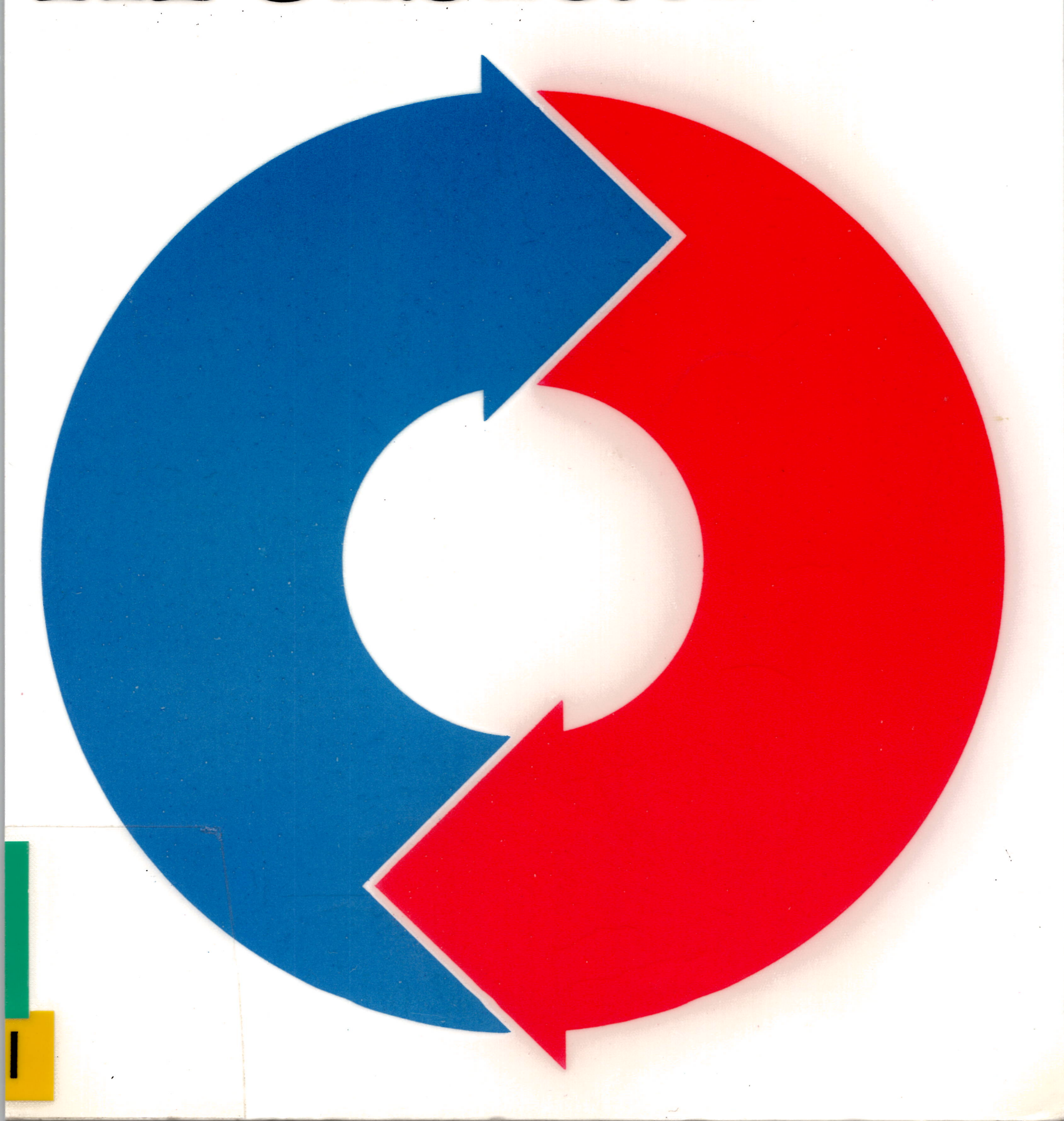
Deutsches Atomforum

# Brennstoff-kreislauf



1. Auflage 1981
Deutsches Atomforum e.V., Heussallee 10, 5300 Bonn 1
Anschriften der Verfasser: F.-K. Pickert, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Abteilung für Angewandte Systemanalyse, Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1; Dr. H.-J. Zech, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Schule für Kerntechnik, Postfach 3640, 7500 Karlsruhe 1
Redaktion: Doris Meyer
Titel und Layout: Walter Prangenberg
Herstellung: Köllen Druck & Verlag GmbH, Schöntalweg 5, 5305 Bonn-Oedekoven, Tel. (0228) 643026 A-Nr. 10019
ISBN 3-922798-03-4

# Vorwort

In der Auseinandersetzung um die Kernenergie sind in jüngerer Zeit zunehmend die Versorgung und Entsorgung der Kernkraftwerke in die Diskussion geraten. Grundlage für eine eigene fundierte Stellungnahme in dieser Kontroverse sind ausreichende technische Informationen über den Brennstoffkreislauf.

Der Erwerb der notwendigen Informationen wird demjenigen, der sich nicht beruflich mit den einschlägigen Gebieten beschäftigen muß, durch zwei Umstände erschwert: Zum einen zeichnet sich der Brennstoffkreislauf dadurch aus, daß eine ungewöhnlich große Anzahl unterschiedlicher Techniken angewendet wird. Von der Geologie bei der Prospektion nach Uranlagerstätten und der Chemie der Erzaufbereitung über die physikalische Verfahrenstechnik der Urananreicherung und die Technik der Brennelementfertigung spannt sich der Bogen hin bis zur heißen Chemie der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente.

Zum anderen ist in einigen Teilgebieten des Brennstoffkreislaufs eine lebhafte Weiterentwicklung zu beobachten. Dies ist einerseits auf die Eigendynamik einer noch relativ jungen Industrie zurückzuführen, andererseits kommen Forderungen aus dem politischen Raum, die dazu zwingen, bisher nur als theoretisch angesehene Möglichkeiten auf ihre praktische Durchführbarkeit hin zu untersuchen und bisher unbekannte Lösungswege einzuschlagen.

Vor diesem Hintergrund haben die Autoren versucht, den aktuellen Stand und die Entwicklungstendenzen des Brennstoffkreislaufs darzustellen, und sie hoffen, einen für den Nichtfachmann erträglichen Kompromiß zwischen wissenschaftlicher Korrektheit und Lesbarkeit erreicht zu haben.

Wir möchten an dieser Stelle den vielen Kollegen danken, die uns kritische Ratschläge und Anregungen gegeben haben, sowie unseren Dank an die in- und ausländischen Firmen der europäischen Kernindustrie aussprechen, die uns mit Auskünften, Informationen und Bildmaterial bei der Abfassung dieser Broschüre geholfen haben. Dem Kernforschungszentrum Karlsruhe gilt unser Dank für die wohlwollende Unterstützung bei der Ausführung dieser Arbeit.

Pickert, Zech

# Inhalt

# 1. Kernbrennstoffe und Kernkraftwerke

## 1.1 Was ist Kernbrennstoff?

Brennstoffe werden alle diejenigen Materialien genannt, die — wie z. B. Kohle, Holz, Öl — bei ihrer Verbrennung Wärmeenergie abgeben.

In Anlehnung daran werden auch jene Stoffe als Brennstoffe bezeichnet, die in einem Kernkraftwerk zur Energieerzeugung genutzt werden. Obwohl in einem Kernkraftwerk keine Verbrennung abläuft, sondern durch Prozesse mit Atomkernen Energie erzeugt wird, hat es sich doch eingebürgert, in diesem Zusammenhang von Kernbrennstoffen zu reden.

### 1.1.1 Spaltstoffe

In Kernkraftwerken wird der Prozeß der Kernspaltung zur Energieerzeugung benutzt: Es gibt eine Reihe von Atomkernen, z. B. U 235, Pu 239, Pu 241, Pu 233[1], die Neutronen einfangen und dadurch zur Spaltung angeregt werden. Diese Stoffe werden Spaltstoffe genannt.

Durch die Kernspaltung entstehen (gewöhnlich zwei) neue, leichtere Atomkerne, die Spaltprodukte genannt werden. Daneben werden bei jeder Spaltung eins bis fünf Neutronen und Energie freigesetzt, z. B.

| | | | |
|---|---|---|---|
| Spaltstoff + | Neutron → | Spaltprodukte + Neutronen + | Energie |
| U 235 + | n → | Ba 144 + Kr 90 + 2n + | ca. 200 MeV |

Die Energie (ca 200 MeV ≈ $3{,}08 \cdot 10^{-11}$ Ws) äußert sich zunächst im wesentlichen als Bewegungsenergie der Spaltprodukte. Diese werden sehr rasch abgebremst, wobei ihre Bewegungsenergie in Wärmeenergie umgewandelt und der Brennstoff erhitzt wird.

Diese Wärme wird über den Weg Dampf-Turbine-Generator im Kernkraftwerk zur Erzeugung elektrischer Energie benutzt.

Da die Kernspaltung an das Vorhandensein von spaltbaren Kernen gebunden ist, muß Kernbrennstoff Spaltstoffe in einer bestimmten Konzentration enthalten, die u. a. von der Konstruktion des Reaktors abhängt.

---

1) Atomkerne werden durch das Symbol für das chemische Element, z. B. U für Uran, und durch Angabe der Nukleonenzahl, z. B. 235, vollständig gekennzeichnet.

## 1.1.2 Brutstoffe und sekundäre Spaltstoffe

In dem in der Natur vorkommenden chemischen Element Uran ist das spaltbare Isotop U 235 nur mit rd. 0,72% vertreten, während der überwiegende Anteil von ca. 99,28% aus dem nicht spaltbaren Isotop U 238 besteht (ein weiteres Uranisotop U 234 ist nur in Spuren vertreten und technisch ohne Bedeutung).

Auch U 238 kann Neutronen einfangen, spaltet dann jedoch in der Regel nicht, sondern verwandelt sich über kurzlebige Zwischenkerne unter Aussendung von ß-Strahlung in Plutonium 239,

| | | | | |
|---|---|---|---|---|
| Brutstoff + | Neutron → | Zwischen-kern → | Zwischen-kern → | sekundärer Spaltstoff |
| U 238 + | n → | U 239 → | Np 239 → | Pu 239 |

Das neu entstandene Pu 239 ist spaltbar. Es ist ein sekundärer Spaltstoff. Der Umwandlungsvorgang wird Konversion oder Brutprozeß genannt. Stoffe, die sich nach Neutroneneinfang in sekundäre Spaltstoffe umwandeln, heißen Brutstoffe (s. a. Tab. 1).

Tab. 1: Kenndaten von Spalt- und Brutstoffen

| Element-name | Bezeichn. d. Isotops | Herkunft | Eigen-schaft | Kernaufbau Neu tronen | Pro tonen | Nukle-onen |
|---|---|---|---|---|---|---|
| Uran (U) | U 235 | natürlich | spaltbar | 143 | 92 | 235 |
| | U 238 | natürlich | nicht sp. | 146 | 92 | 238 |
| Thorium (Th) | Th 232 | natürlich | nicht sp. | 142 | 90 | 232 |
| Plutonium (Pu) | Pu 239 | künstlich | spaltbar | 145 | 94 | 239 |
| Uran (U) | U 233 | künstlich aus Th 232 | spaltbar | 141 | 92 | 233 |

Kernbrennstoffe für Leistungsreaktoren bestehen immer aus einem Gemisch von Spaltstoffen und Brutstoffen.

## 1.2 Wie wird der Kernbrennstoff genutzt?

Soll die bei den weiter oben beschriebenen Spaltvorgängen freiwerdende Wärme in technischem Maßstab genutzt werden, so müssen Kernspaltungen in einem kontinuierlichen Prozeß ablaufen.

Eine solche kontrollierte Kettenreaktion kann sich nur dann erhalten, wenn eine Reihe von Bedingungen erfüllt werden. Davon sollen an dieser

Stelle nur jene erwähnt werden, die von Bedeutung für den Brennstoff sind:

Der Spaltstoffanteil im Brennstoff muß hoch genug sein, damit die in der vorhergehenden Spaltgeneration freigewordenen Neutronen genügend weitere Spaltungen auslösen können.

Der Kernbrennstoff muß in einer bestimmten geometrischen Anordnung in den Reaktor eingebracht werden. Bei der Mehrzahl der heute genutzten Reaktortypen ist deshalb der Brennstoff in langen schlanken Metallröhren (Brennstäben) enthalten, die zu Stabbündeln (Brennelementen) zusammengefügt sind. (Eine Ausnahme hiervon sind die kugel- bzw. blockförmigen Elemente der Hochtemperaturreaktoren.)

Die im Brennstoff herrschenden Temperaturen dürfen in diesem keine chemischen Veränderungen auslösen, die erheblichen freiwerdenden Wärmemengen müssen gut abgeführt werden können. Kernbrennstoff hat daher heute meist die Form des sehr wärmestabilen Dioxids ($UO_2$; $PuO_2$). Das Stabbündelkonzept erlaubt durch seine große Oberfläche die notwendige Wärmeabfuhr durch das jeweilige Kühlmittel.

## 1.3. Wirkungsweise eines Kernkraftwerks

Es wurde bereits ausgeführt, daß die im Brennstoff bei der Kernspaltung freiwerdende Wärmeenergie durch ein Kühlmittel abgeführt und letztlich in elektrische Energie umgewandelt wird. Das erhitzte Kühlmittel kann entweder unmittelbar in Dampfform überführt werden oder mit Hilfe von Wärmetauschern in einem nachgeschalteten Kreislauf Dampf erzeugen. Mit dem Dampf wird eine Turbine gespeist, die ihrerseits mit einem Generator gekoppelt ist. Da die Konstruktion des Reaktors innerhalb des nuklearen Dampferzeugungssystems Einfluß auf Menge, Art und Form des Kernbrennstoffs hat, soll insoweit auf die heute und die in nächster Zukunft wichtigsten Typen von Kraftwerksreaktoren eingegangen werden.

### 1.3.1 Reaktortypen

Die Leichtwasserreaktoren (LWR) mit ihren beiden Varianten Druckwasserreaktor (DWR) und Siedewasserreaktor (SWR) müssen nach Anzahl und Leistung weltweit als führend angesehen werden. Aus diesem Grunde wurde das Schwergewicht dieser Broschüre auf den Brennstoffkreislauf der Leichtwasserreaktoren gelegt.

In den LWR dient Leichtwasser ($H_2O$) zur Kühlung des Brennstoffs. Wenn dieses Wasser im Reaktor selbst zum Sieden gelangt, spricht man vom Siedewasserreaktor, die Brennelemente wirken hier praktisch wie Tauchsieder. Der erzeugte Dampf wird direkt auf die Turbine geleitet. Beim Druckwasserreaktor wird das Verdampfen des Kühlmittels durch den Aufbau

hoher Drücke bis zu 160 bar verhindert. Das erhitzte, unter Druck stehende Wasser gibt seine Energie über Wärmetauscher an einen Sekundärwasserkreislauf ab. Erst in diesem wird der Dampf für die Turbine erzeugt. Charakteristisch für den LWR-Brennstoff ist, daß die natürliche Konzentration von spaltbarem U 235 im Natururan nicht ausreicht, um die Kettenreaktion aufrechtzuerhalten. Diese Reaktoren brauchen vielmehr Uran, dessen U-235-Gehalt auf 2—3% angereichert wurde. Die mit den Leichtwasserreaktoren nahe verwandten Schwerwasserreaktoren (HWR)[2] vom MZFR[3]-Typ und vom CANDU[4]-Typ können Uran mit dem natürlichen Spaltstoffgehalt von 0,72% U-235 nutzen, weil das Kühlmittel Schwerwasser ($D_2O$) weniger Neutronen absorbiert als Leichtwasser.

Bei beiden vorgenannten Reaktorlinien wird das Uran in Form eines Oxids ($UO_2$) eingesetzt. Der Brennstoff ist in dünnwandigen gasdichten Hüllrohren eingeschlossen, die zu Brennelementbündeln zusammengefügt sind.

Von den fortgeschrittenen Reaktorarten sollen hier erwähnt werden der Schnelle Brutreaktor (SBR) und der Hochtemperaturreaktor (HTR). Der SBR wird mit einer Mischung aus Uranoxid und Plutoniumoxid, sogenanntem Mischoxidbrennstoff, betrieben, der, ähnlich wie bei den vorerwähnten Wasserreaktoren, in Form von Stabbündelelementen eingesetzt wird. Die ebenfalls bündelförmigen Brutelemente enthalten als Brutstoff abgereichertes Uran.

Auch der HTR-Brennstoff besteht aus Uran-Oxid (als Brutstoff kann auch Thoriumoxid verwendet werden). In der äußeren Form weichen seine Brennelemente grundlegend vom Bündelelement ab. Der HTR-Brennstoff hat die Form mohnkorngroßer kohlenstoffbeschichteter Partikel, die entweder in kugel- oder blockförmige Brennelemente aus Graphit eingeschlossen sind.

## 1.4 Brennstoffkreislauf

Der Kernbrennstoffkreislauf läßt sich von der Aufgabenstellung her deutlich in zwei Teilbereiche untergliedern, den Versorgungsteil und den Entsorgungsteil. Da sich die Brennstoffzyklen der vorgenannten einzelnen Reaktortypen im Prinzip nur wenig voneinander unterscheiden, soll hier der LWR-Zyklus stellvertretend skizziert werden.

---

2) HWR: engl. Abkürzung für Heavy-Water-Reactor
3) MZFR: Mehrzweck Forschungsreaktor, Schwerwasserreaktor mit Druckkessel im Kernforschungszentrum Karlsruhe
4) CANDU: engl. Abkürzung für Canadian Deuterium Uranium (Reaktor)

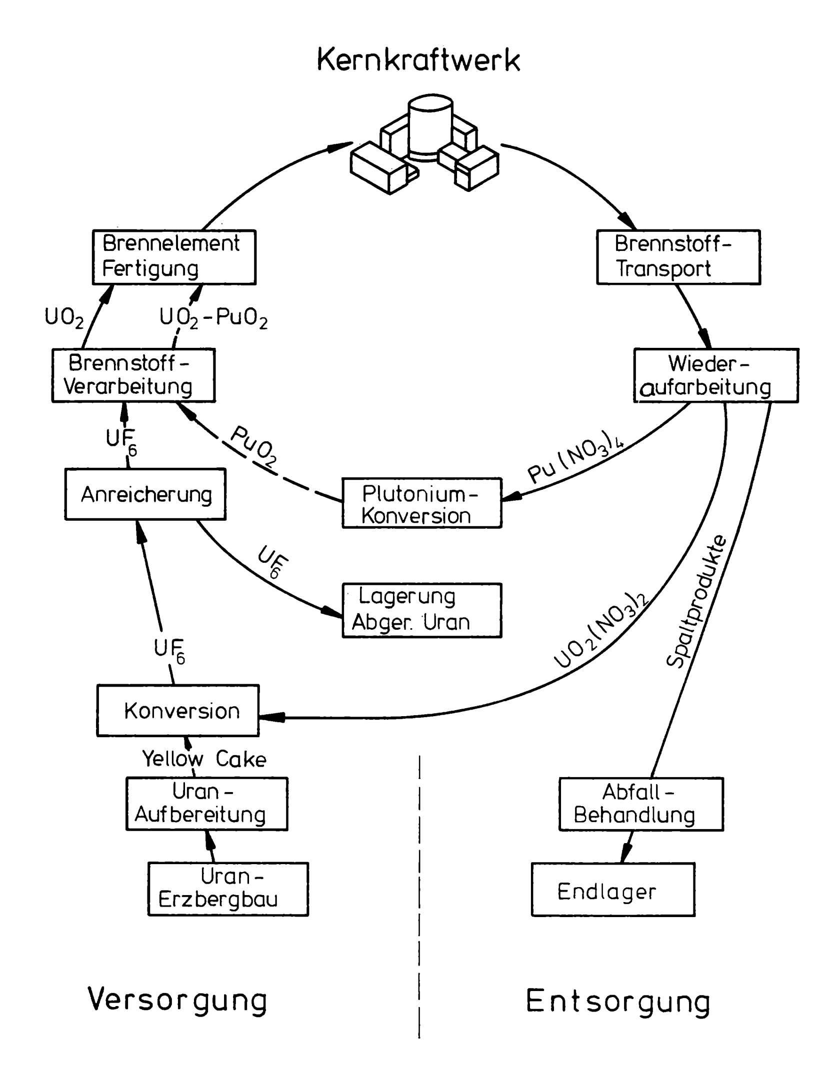



Abb. 1: Brennstoffkreislauf der Leichtwasserkernkraftwerke

### 1.4.1 Brennstoffversorgung

In den Bereich des Versorgungssektors gehören alle Gewinnungs- und Fertigungsschritte bis zur Anlieferung der einsatzfähigen Brennelemente beim Kernkraftwerk. Diese einzelnen Versorgungsstufen sind

- die Suche, der Abbau und die Konzentrierung des Urans (Kapitel 2)
- die Konversion und die Anreicherung (Kapitel 3)
- die Herstellung der Brennelemente (Kapitel 4)

### 1.4.2 Brennstoffentsorgung

Nach dem Einsatz im Reaktor enthält der Brennstoff einerseits hochradioaktive Spaltprodukte, die einer sicheren Endlagerung zugeführt werden müssen, andererseits aber auch wertvollen, noch nicht verbrauchten Brennstoff, der aus energiewirtschaftlichen und sicherheitstechnischen Gründen wieder in den Kreislauf zurückgeführt werden muß. Hierdurch tritt neben das Entsorgungsmotiv gleichrangig das Rückgewinnungsmotiv. Die Einzelschritte des Entsorgungssektors sind

- der Transport des abgebrannten Brennstoffs (Kapitel 5)
- die Wiederaufarbeitung (Kapitel 6)
- die Behandlung und Lagerung radioaktiver Abfälle (Kapitel 7)

### 1.4.3 Schließung des Kreislaufs

Die Aktivitäten zur Versorgung und Entsorgung schließen sich zum Brennstoffkreislauf, wenn die bei der Aufarbeitung wiedergewonnenen spaltbaren Stoffe in den Versorgungsteil rückgespeist werden, wobei diese Rückführung nicht nur in Reaktoren des gleichen Typs erfolgen muß. Die Fragen der Schließung der Brennstoffkreisläufe werden abschließend in Kapitel 8 behandelt.

# 2. Natururan

Die Suche nach Uranlagerstätten, der bergmännische Abbau der Erze und deren weitere mechanische und chemische Verarbeitung bis zur Gewinnung des Urankonzentrates („Yellow Cake“) sind die ersten Schritte auf dem Weg des Urans zum einsatzfähigen Kernbrennstoff.

Die wirtschaftliche Bedeutung des Urans, das erst im Jahre 1789 durch den Berliner Chemiker KLAPROTH entdeckt wurde, blieb das ganze 19. Jahrhundert hindurch gering. Eine gewisse industrielle Bedeutung erhielt das neue Element bei der Herstellung von Glas- und Porzellanfarben. Insgesamt dürften in Europa und Amerika bis 1900 nur etwa 1200 Tonnen allerdings hochprozentige Erze abgebaut worden sein. [1] Erst in der Folge der Entdeckung der Kernspaltung durch Otto Hahn im Jahre 1938 begann seine Rolle als Kernbrennstoff, als vermutlich einziger Energieträger, der angesichts schwindender fossiler Brennstoffreserven in der Lage ist, den stetig steigenden Energiebedarf der Welt langfristig zu decken.

## 2.1 Uran in der Natur

Eine erste unabdingbare Voraussetzung für die sichere Brennstoffversorgung der Reaktoren ist die zuverlässige Kenntnis über ausreichende, wirtschaftlich abbaubare Uranvorräte.

Obwohl Uran mit durchschnittlich 2,7 ppm1) am Aufbau der Erdkruste beteiligt ist und damit häufiger vorkommt als beispielsweise Silber (0,07 ppm) und Gold (0,004 ppm), werden jedoch nur sehr selten Lagerstätten gefunden, deren Urangehalte im Bereich von Prozenten liegen. Das ist zurückzuführen auf die hohe chemische Reaktionsfreudigkeit des Urans: häufige Lösungs- und Fällungsvorgänge haben im Verlaufe der Erdgeschichte zu einer praktisch weltweiten Verteilung der ursprünglichen Urankonzentrationen geführt. [2]

Durch eingehende Studien der physikalisch-chemischen Bildungsgeschichte von bereits bekannten Uranlagerstätten sind bestimmte Gesetzmäßigkeiten gefunden worden, die bei der Entstehung von Lagerstätten wirksam gewesen sind. Aufgrund dieses Wissens und der allgemeinen Kenntnis der geomorphologischen Struktur eines größeren Raumes können in erster Näherung Regionen ermittelt werden, in denen mit Uranlagerstätten gerechnet werden kann.

Die Existenz von rund 180 Mineralien, deren wesentlicher Bestandteil Uran ist, läßt die Vermutung zu, daß es wahrscheinlich ebenso viele spezifische Bildungsmechanismen gibt. Diese Vielfalt von Vererzungen läßt sich jedoch in drei große Gruppen nach ihrer Entstehungsgeschichte einteilen: [2]

— Uranvorkommen in Magmatiten
— Uranvorkommen in Sedimenten
— Uranvorkommen in Gängen

1) ppm = parts per million (1g/Tonne)

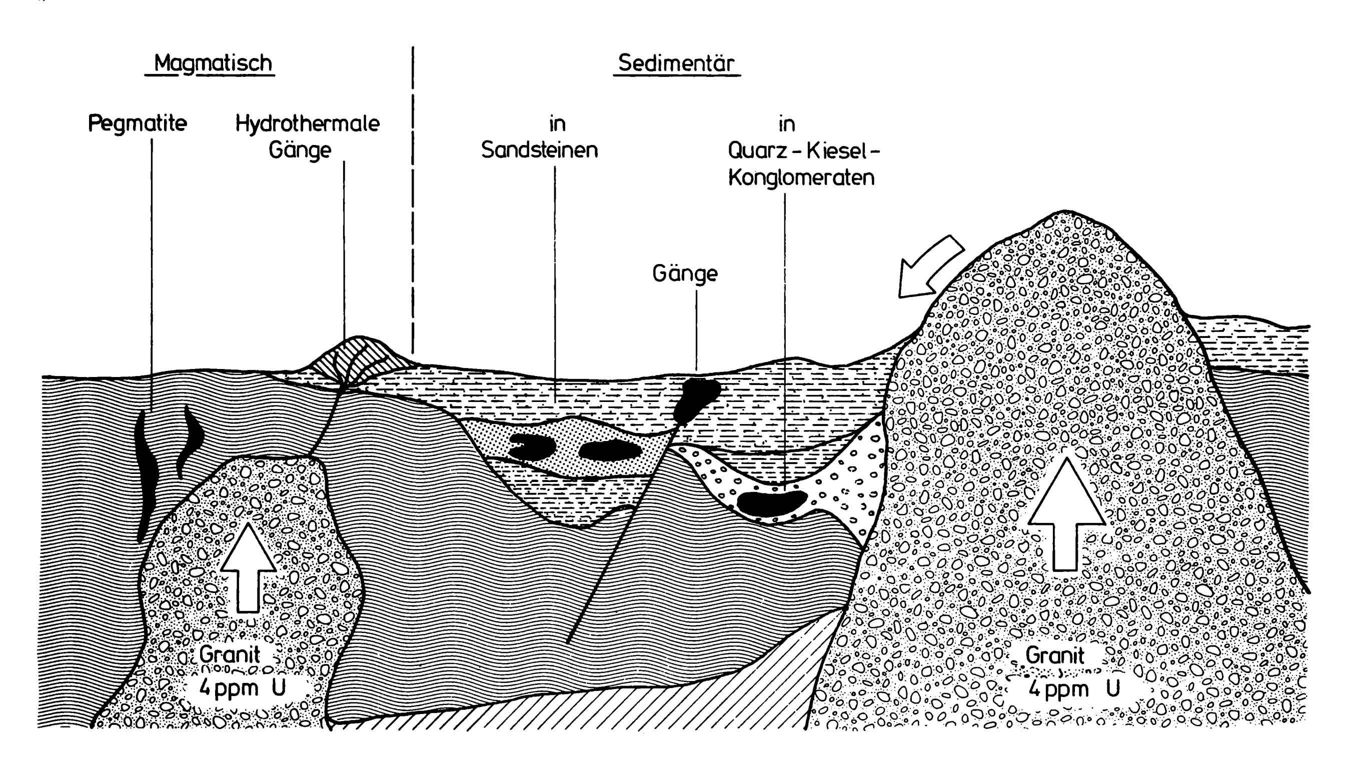



Abb. 2: Entstehung von Uranlagerstätten

In dem aus den tieferen Schichten der Erdkruste aufsteigenden Magma spielten sich, beeinflußt durch sinkenden Druck und sinkende Temperaturen, stufenweise Kristallisationsvorgänge der verschiedenen Minerale ab. Beim Uran setzten Kristallisations- und damit verbundene Konzentrationsvorgänge verhältnismäßig spät ein. In den oberen Regionen von Graniten bildeten sich Uranlagerstätten in Form von Pegmatiten. Wenn flüchtige uranhaltige Lösungen durch Klüfte oder Störungen in das Deckgebirge vordrangen, konnten sich hydrothermale Gänge, Ganglagerstätten bilden.

Lagerstätten dieser Art befinden sich z. B.

| | | |
|---|---|---|
| in Kanada: | Bankroft | (Pegmatit) |
| in Südafrika: | Rössing | (Pegmatoide) |
| in der Tschechoslowakei: | Joachimsthal | (hydrothermale Gänge) |

Bei den Uranvererzungen des sedimentären Bereichs müssen zwei Entstehungsepochen unterschieden werden, die mit dem Sauerstoffgehalt der Erdatmosphäre zusammenhängen. Beim Mangel von Sauerstoff konnte das Uran kaum von seiner schwerlöslichen 4wertigen Form in die leichtlösliche 6wertige Form oxidiert werden. Es wird angenommen, daß bis ins untere Proterozoikum hinein (vor 2200 Millionen Jahren) Sauerstoffmangel geherrscht hat. [5] Während dieser erdgeschichtlichen Epoche konnte Uran im wesentlichen nur durch mechanische Erosion abgetragen werden und sich unter dem Einfluß der Schwerkraft an geeigneten Stellen konzentrieren und in Quarzkieselkonglomeraten ablagern. Uranlagerstätten dieser Art gibt es z. B.

in Kanada: Blind River und Elliot Lake
in Südafrika: Witwatersrand
in Brasilien: Serra de Jacobina.

Mit zunehmendem Sauerstoffgehalt der Atmosphäre konnten sich die leichter löslichen Uran-6-Verbindungen bilden. Aus den Lösungen konnte Uran durch Adsorption in Sandsteinen oder durch Reduktion ausgefällt werden und dadurch heute wirtschaftlich interessante Lagerstätten bilden. Etwa 150 verschiedene uranhaltige Mineralisationen dieser Gruppe sind bekannt. Als Beispiel für einige Fundorte dieser Art von Uranerzen seien genannt:

USA: Grant Minerals Belt
Niger: Arlit und Akuta
Australien: Lake Frome.

Wenn uranhaltige Wässer entlang großer Gesteinsrisse eindringen und hier das Uran durch Reduktion gefällt wurde, haben sich gangartige Vererzungen gebildet. Lagerstättenbeispiele hierfür sind zu finden in:

Kanada: Key Lake
Australien: Nabarlek und Jabiluka.

## 2.2 Prospektion und Exploration

Die Kenntnis über die Entstehungsgeschichte der Erzlagerstätten und über die Bedingungen, unter denen diese entstehen konnten, werden zu Modellen verdichtet. Der Vergleich solcher Modelle mit den in der Natur vorgefundenen geologischen Verhältnissen wird dazu genutzt, grundsätzlich untersuchungswürdige Gebiete auszusondern.

Die weitere Uransuche erfolgt dann in der Regel in drei Stufen:

- die großräumige Beurteilung, auch Reconnaissance genannt,
- die Detailerkundung oder Prospektion und schließlich
- der Nachweis der Wirtschaftlichkeit oder die Exploration eines Fundortes.

Das Ziel der großräumigen Untersuchung ist die Eingrenzung von uranhöffigen Schwerpunktgebieten innerhalb eines größeren Raumes. Hierbei werden neben den klassischen Luftaufnahmen in jüngerer Zeit auch das Seitenradar und Satelliten eingesetzt. Nach Auswertung dieser ersten Ergebnisse erfolgen weitmaschige geophysikalische Untersuchungen durch Befahren, Überfliegen und geochemische Probenahmen. Ist eine allgemein höhere Uranverteilung festgestellt worden, muß auf die Detailerkundung übergegangen werden.

Die in der Detailerkundung durchzuführenden eigentlichen Prospektionsarbeiten zielen allgemein auf die weitere Einengung des Erkundungsgebietes und führen im günstigsten Fall zum Auffinden von Erzkörpern. Hierbei macht man sich in erster Linie die radioaktiven Eigenschaften der natürlichen Zerfallsprodukte des Urans zunutze. Wird mit Hilfe empfindlicher Meßgeräte erhöhte $\alpha$- und $\gamma$-Strahlung gemessen, müssen Probebohrungen oder Schürfungen vorgenommen werden, um beurteilen zu können, ob die an der Oberfläche festgestellte Strahlungsanomalie tatsächlich von einem Erzkörper stammt. Ist auch das Ergebnis dieser letzten Untersuchung positiv, beginnt die Stufe der Exploration, die Untersuchung, ob der gefundene Erzkörper wirtschaftlich abbauwürdig ist.

Jetzt müssen engmaschige Bohrungen niedergebracht werden, um sowohl die Ausdehnung als auch den Uranvorrat des Erzkörpers bestimmen zu können. Wichtig sind hierbei chemische Untersuchungen der zutage geförderten Bohrkörper im Hinblick auf die weitere Verarbeitung des Erzes zum Konzentrat.

Neben den sich aus der Natur des Erzkörpers ergebenden Bedingungen für Abbau und Weiterverarbeitung spielen Transportmöglichkeiten, Wasser und Energieversorgung sowie in zunehmendem Maße Umweltfragen eine Rolle. Die Ergebnisse aller vorgenommenen Überlegungen und Untersuchungen finden Eingang in eine Wirtschaftlichkeitsstudie, die Aufschluß darüber gibt, ob der Erzkörper unter den gegebenen Marktverhältnissen abgebaut werden kann oder nicht.

Die hier skizzierten Stufen der Uransuche können sich heute über einen Zeitraum bis zu zehn Jahren erstrecken und Kosten von einigen Millionen Mark verursachen. Da nur etwa 1 Prozent der mit hohen Kosten belasteten

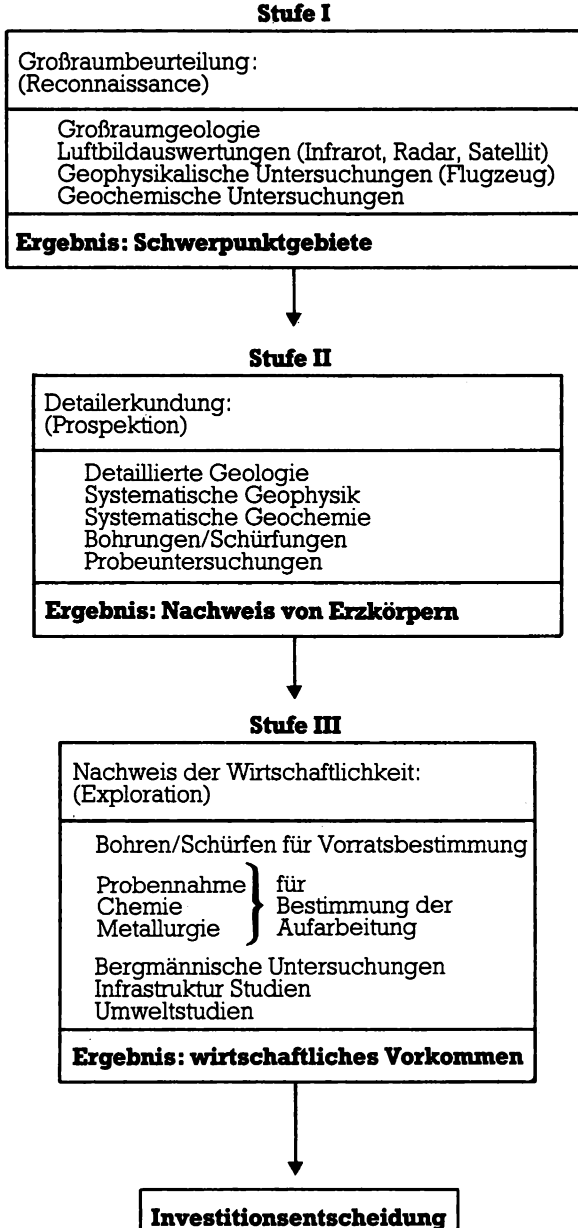



Abb. 3: Stufen der Uransuche

Projekte zu einer wirtschaftlich abbaufähigen Lagerstätte führt, wird heute mit durchschnittlichen Suchkosten von 10 DM pro kg gefundenes, abbaufähiges Uran gerechnet.

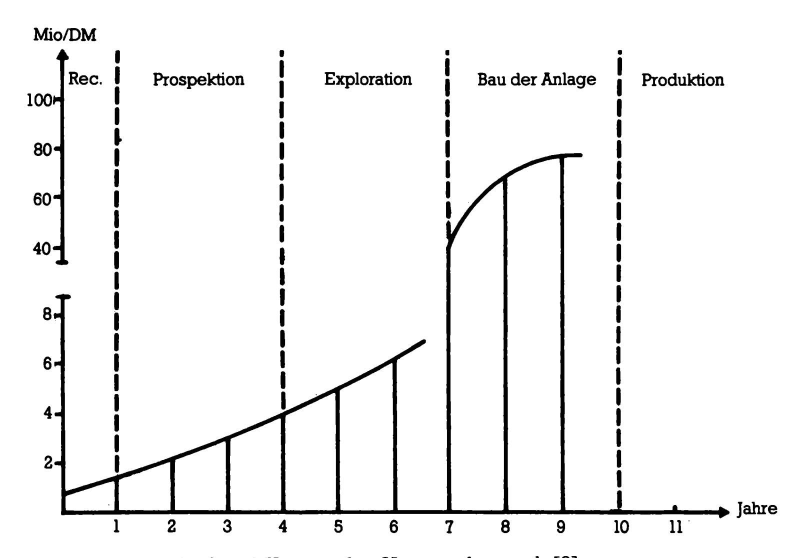



Abb. 4: Zeitbedarf und Kosten der Uransuche nach [2]

## 2.3 Uranreserven — Uranvorräte

Der Gesamturangehalt der Erdkruste wird mit insgesamt etwa $40{,}8 \times 10^{12}$ Tonnen angenommen. Davon sind rd. drei Viertel auf den Kontinenten, der Rest im Meerwasser zu suchen. [3] Wegen der äußerst geringen Konzentration ist die wirtschaftliche Urangewinnung aus Meerwasser in naher Zukunft nicht möglich. Von dem auf den Kontinenten vorhandenen Uran werden unter Berücksichtigung heute geltender technisch-wirtschaftlicher Bedingungen nur jene Vorkommen als bauwürdig angesehen, die mindestens Konzentrationen zwischen 0,03 — 0,05 % Uran aufweisen.

Diese Grenze kann nur dann unterschritten werden, wenn Uran als Nebenprodukt, wie beispielsweise im Goldbergbau in Südafrika, anfällt.

Die derzeit wirtschaftlich abbaubaren und für die westliche Welt zugänglichen Uranvorkommen werden nach Kostenklassen ($/kg U) und nach dem Wahrscheinlichkeitsgrad für die Existenz von Lagerstätten eingeteilt. Der Wahrscheinlichkeitsgrad wird allgemein in zwei Kategorien angegeben:

1. hinreichend gesicherte Vorräte
2. zusätzlich geschätzte Vorräte

Im Jahr 1980 wurden die hinreichend gesicherten Vorräte mit etwa 2,6 Mio Tonnen Uran, die zusätzlich geschätzten Vorräte mit weiteren rd. 2,5 Mio Tonnen Uran angegeben. [4] Tabelle 2 zeigt die Aufteilung dieser Gesamtmengen nach Kostenklassen und deren geographische Verteilung.

Tab. 2 Uranvorräte der westlichen Welt in 1000 t (Stand 1980)

| | Hinreichend gesicherte Vorräte | | Zusätzlich geschätzte Vorräte | |
|---|---|---|---|---|
| | bis 80 $/kgU | 80—130 $/kgU | bis 80 $/kgU | 80—130 $/kgU |
| Australien | 290 | 9 | 47 | 6 |
| Kanada | 215 | 20 | 370 | 358 |
| Südafrika | 247 | 144 | 54 | 85 |
| Übriges Afrika | 362 | 23 | 85 | 39 |
| USA | 531 | 177 | 773 | 385 |
| Westeuropa | 66 | 325 | 49 | 49 |
| Sonstige | 139 | 42 | 102 | 48 |
| Gesamt | 1850 | 740 | 1480 | 970 |

Da die hier ausgewiesenen Gesamtvorräte von rd. 5 Mio Tonnen Uran noch im Boden liegen, ist es wichtig zu wissen, daß nur die auch als Reserve bezeichneten rd. 1,9 Mio t hinreichend gesicherter Vorräte der Kostenklasse bis 80 $/kg U für die unmittelbare Bedarfsdeckung infrage kommen.

Die oben ausgewiesene Menge von 1,9 Mio t reicht beim gegenwärtigen Trend der Kernenergieeinführung nur dann bis über das Jahr 1995 hinaus, wenn die Produktion von Urankonzentrat aus den Vorkommen dieser Kategorie ohne Einschränkung durchgeführt und das Produkt auf dem Weltmarkt angeboten wird. Einschränkende Faktoren können technischer, wirtschaftlicher und politischer Natur sein, wie z. B.

- die Eigenarten der Erzkörper und deren geographische Entlegenheit;
- die Produktionsrate und Absatzchancen des Hauptproduktes, falls Uran als Kuppelprodukt anfällt;
- die wirtschaftlich und technisch optimale Produktionsmenge der Lagerstätten, die kurzfristig nicht überschritten werden kann;
- Exportrestriktionen der Förderländer.

Die genannten technischen Einschränkungen gelten in höherem Maß für die hinreichend gesicherten Vorräte der Kostenklasse von 80—130 $/kgU. Über die Uranvorräte im Gebiet des Ostblocks und der Volksrepublik China sind keine verläßlichen Zahlen bekannt.

Die Versorgungslage der westlichen Welt über das Jahr 2000 hinaus läßt sich nur schwer abschätzen, da hierbei nicht nur die absolute Zahl der in Betrieb gehenden Kernkraftwerke, sondern eine Reihe anderer Faktoren erheblichen Einfluß hat. Mittelfristig ist es von Bedeutung, ob es weltweit gelingt, den abgebrannten Brennstoff aufzuarbeiten und das dabei anfallende Uran und Plutonium wieder als Brennstoff einzusetzen. Langfristig — über das Jahr 2000 hinaus — gewinnt die Frage zunehmend an Gewicht, ob und inwieweit hochkonvertierende Reaktoren und Brutreaktoren mit ihrem geringeren spezifischen Uranbedarf die derzeitig vorherrschenden Leichtwasserreaktoren werden ablösen können.

## 2.4 Uranversorgung der Bundesrepublik Deutschland

Abgesehen von kleineren Erzkörpern bei Menzenschwand und Geroldsau im Schwarzwald gibt es bis heute keine Uranvorkommen in der Bundesrepublik, die derzeit wirtschaftlich nutzbar wären. Die installierte Kernkraftwerksleistung betrug 1979 mit ca. 8,8 Gigawatt elektrisch ($GW_e$) etwa 7,6% der insgesamt in der westlichen Welt in Betrieb befindlichen Kernkraftwerksleistung von 116 $GW_e$.

Bis zum Jahr 2000 wird nach den Mitte 1979 bekannten Ausbauplänen die installierte Kernenergieleistung auf 754 $GW_e$ ansteigen. [5] Der Anteil der Bundesrepublik wird sich voraussichtlich bei 7% der jeweiligen Gesamtleistung einpendeln. In der gleichen Größenordnung muß der Uranbedarf der Bundesrepublik erwartet werden. Der kumulative Uranbedarf des Westens wird bei diesem Szenario bis zur Jahrhundertwende mit 2,276 Mio Tonnen errechnet [4] und entspricht damit größenordnungsmäßig den hinreichend gesicherten Vorräten, wie sie in Tab. 2 ausgewiesen sind. Der Bedarfsanteil der Bundesrepublik läßt sich unter Annahme der o. g. Relation für den gleichen Zeitraum auf etwa 150000 Tonnen Uran berechnen.

Obwohl bereits seit 1956 Anstrengungen unternommen wurden, in Deutschland wirtschaftlich abbaubare Vorkommen zu finden, gelang es bis heute nur, etwa 10—15000 Tonnen Uran nachzuweisen.

Angesichts dieser schmalen nationalen Versorgungsbasis sind mehrere Wege beschritten worden, um den Uranbedarf der Bundesrepublik Deutschland durch Importe zu sichern.

Die deutschen Energieversorgungsunternehmen haben langfristige Lieferverträge mit ausländischen Produzenten abgeschlossen.

Zwei deutsche Urangesellschaften haben z. T. mit finanzieller Hilfe durch die Bundesregierung Beteiligungen an ausländischen Bergbaugesellschaften erworben und haben sich bis heute dadurch entsprechende Anteile bei der Ausbeutung von Lagerstätten in Kanada und Niger gesichert. Gemeinsam mit nationalen Gesellschaften sind Explorations- und Prospektionsarbeiten in Südamerika und Asien, Afrika und Australien begonnen worden.

Auf dem Gebiet der Bundesrepublik Deutschland selbst sind derzeit sechs Unternehmen bemüht, abbauwürdige Lagerstätten zu finden.

## 2.5 Vom Uranerz zum Urankonzentrat

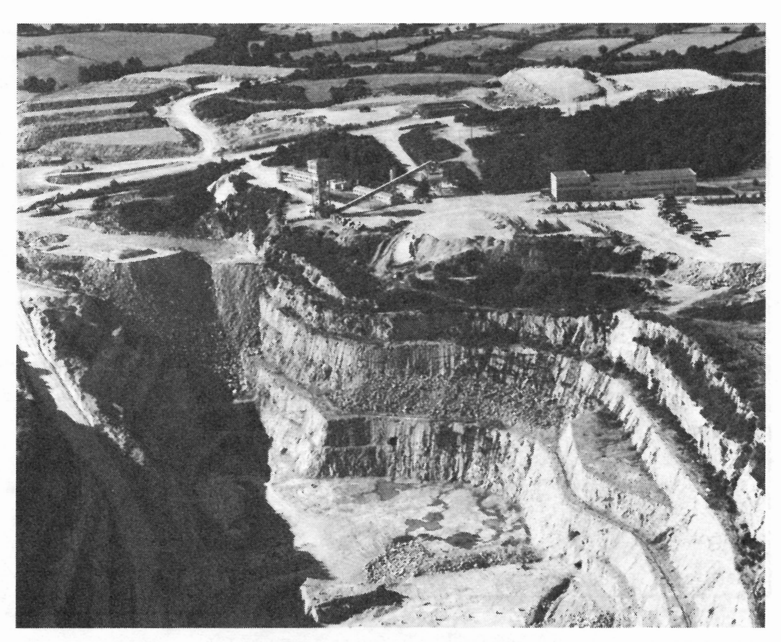
Die ersten Produktionsschritte, die das Uran auf seinem Weg bis zum einsatzbereiten Kernbrennstoff durchläuft, sind die bergmännische Gewinnung der Erze und die Aufbereitung des Urans bis zum marktgängigen Produkt, dem Urankonzentrat oder „Yellow Cake". Das Konzentrat enthält

ca. 70% Uran in Form von Uranaten. Bei einem mittleren Gehalt der z. Z. abgebauten Lagerstätten von 0,05 bis 0,2% Uran müssen so erhebliche Mengen Erz durchgesetzt werden, daß sich dessen Transport zu einer zentralen Aufbereitungsanlage aus Kostengründen verbietet. Schon aus diesem Grunde müssen Bergbau und Uranaufbereitung als räumliche Einheit angesehen werden. Der Erzvorrat und die mechanische als auch chemische Natur des Erzes bestimmen darüber hinaus die Kapazität und die Auslegung der zugehörigen Aufbereitungsanlage.

Uranerze werden sowohl im Tagebau als auch im Tiefbau (Untertagebau) gewonnen. Die Entscheidung, welche Abbaumethode zu wählen ist, wird durch die während der Explorationsphase gewonnenen Erkenntnisse über die Art des Erzkörpers, dessen Lage und Teufenerstreckung bestimmt. Die entscheidende Einflußgröße ist hierbei das Erz/Abraumverhältnis. Wird die Menge der abzuräumenden Deckschichten, gemessen an der ausbringbaren Erzmenge, zu groß, muß deren Gewinnung im Tiefbau erfolgen. Ein Vergleich der Abbildungen 5 und 6 zeigt deutlich, daß die im Tagebau zu bewältigenden Abraummengen mit zunehmender Teufe des Erzkörpers wegen der notwendigen Abschrägungen der Grube unverhältnismäßig stark anwachsen.

Tagebau:

Da der abzubauende Erzkörper in der Regel nicht zutage tritt, muß zuerst das Deckgebirge abgeräumt werden. Der Abbau des freigelegten Erzes



*Urantagebau in Frankreich (Vendée).* Foto: CEA-Perceval

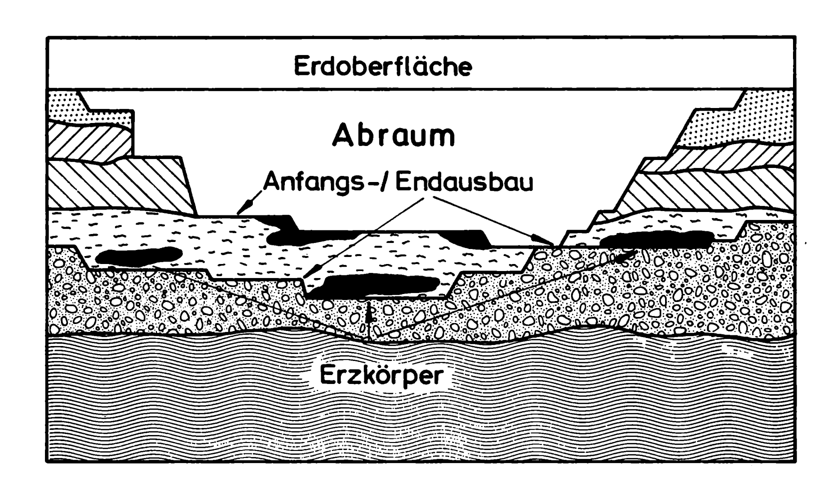



Abb. 5: Uranbergwerk: Tagebau

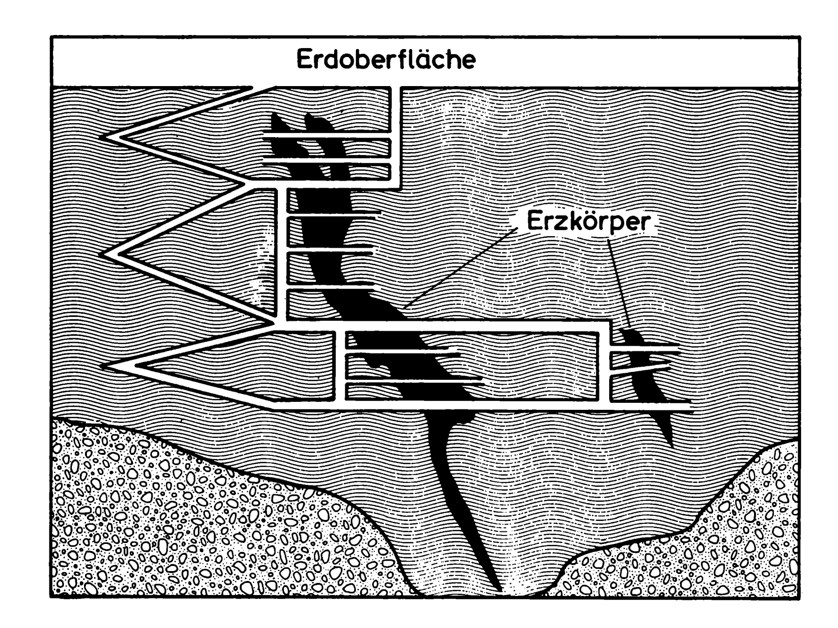



Abb. 6: Uranbergwerk: Tiefbau

erfolgt in Schichten (Strossen) von 2 bis 4 m Mächtigkeit. Weiche Sandsteinerze können durch Reißhaken aufgelockert werden. Bei härterem Gestein muß das Erz durch Bohr- und Sprengarbeit aus dem Verbund gelöst werden. Für das Verladen und den Abtransport werden Bagger, Schaufellader und Schwerlastwagen eingesetzt. Um ein Erz mit möglichst gleichmäßigem mittleren Urangehalt in die Aufbereitung geben zu können, werden aus der im Abbau befindlichen Strosse vorlaufend Proben entnommen und der Abbau entsprechend gesteuert. Das die Grube verlassende Erz wird meist nochmals beprobt und entsprechend vorsortiert.

Tiefbau:

Läßt das bereits erwähnte Erz/Abraumverhältnis einen wirtschaftlichen Tagebau nicht zu, so muß das Erz im Tiefbau gewonnen werden. Der Aufschluß des Vorkommens erfolgt durch Schächte und Strecken (Abb. 6). Das in den horizontalen Strecken gewonnene Erz wird durch die Schächte zutage gefördert. In jüngerer Zeit wurden Förderschächte vielfach durch Schrägstrecken oder Rampen ersetzt, über die das Erz dann mit Hilfe von Lastkraftwagen zur Oberfläche transportiert werden kann.

Aus den bisherigen Ausführungen geht hervor, daß beim Uranbergbau im wesentlichen die gleiche Technik angewendet wird wie im konventionellen Bergbau. Allerdings muß besonderes Gewicht auf eine sehr gute Belüftung (Bewetterung) der Gruben gelegt werden, um unzulässig hohe Konzentrationen des radioaktiven Edelgases Radon zu verhindern.

Radon entsteht durch den natürlichen Zerfall des Urans und bildet seinerseits radioaktive kurzlebige Tochterprodukte, die, eingeatmet, zu einem erhöhten Lungenkrebsrisiko führen.

Die Bewetterung im Urantiefbau kann fünf- bis zehnfach höher als im konventionellen Tiefbau sein. Das freigewordene Radon soll dadurch möglichst schnell aus dem Bergwerk entfernt werden. Unterdrückung von Staubbildung, zeitweiliges Versiegeln von freigelegten Erzstrossen und entsprechende persönliche Ausrüstung der Bergleute seien als weitere Strahlenschutzmaßnahmen genannt.

Das Ziel der Uranerzaufbereitung ist die Herstellung eines möglichst hochkonzentrierten Uransalzes. Je nach den von der Chemie des Uranerzes bestimmten chemischen Verfahren handelt es sich dabei um verschiedene Uranate.

Charakteristisch für Uranaufbereitungsanlagen ist, daß in den ersten Stufen des Prozesses außerordentlich große Tonnagen durchzusetzen sind. Der wirtschaftlich gewinnbare Erzvorrat und dessen Urangehalt sind wesentliche Bestimmungsgrößen für die Tageskapazität der Aufbereitungsanlage, die zwischen einigen 100 bis zu einigen 10000 Tagestonnen Erz betragen kann. Die chemische Natur des Erzes bestimmt das Verfahrensschema des Gesamtprozesses, der sich grundsätzlich in eine physikalische Vorbehandlung und die chemische Verarbeitung einteilen läßt.

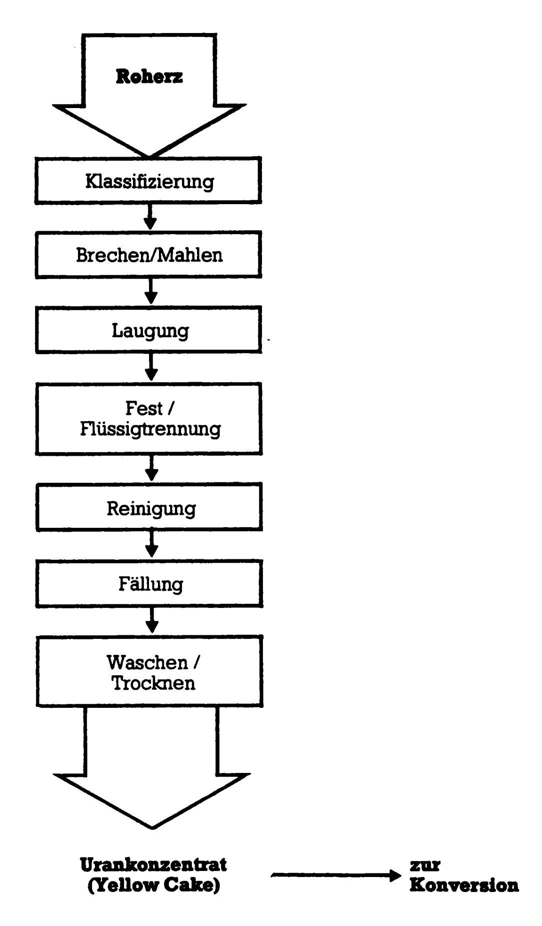



Abb. 7: Vom Uranerz zum Erzkonzentrat

Die physikalische Vorbehandlung besteht aus dem Mischen und dem anschließenden Brechen und Mahlen der angelieferten Erze. Durch diesen ersten Schritt wird eine weitere Homogenisierung und Erhöhung des mittleren Urangehaltes der zur Beschickung gelangenden Erze angestrebt. Die läßt sich verhältnismäßig einfach durch Klassifizierung nach der $\gamma$-Aktivität des Erzes und anschließendes Verschneiden der einzelnen Erzqualitäten erreichen [6]. Die anschließende Zerkleinerung der Aufbereitungsaufgabe durch Brechen und Mahlen dient der Vergrößerung der Oberfläche für den Angriff des chemischen Lösungsmittels beim Laugungsprozeß. Die Korngröße des Mahlgutes ist erzspezifisch und muß so gewählt werden, daß eine Uranausbringung von etwa 90% erreicht wird.

Grundsätzlich können zwei unterschiedliche Laugungsverfahren angewendet werden: das saure Verfahren oder das alkalische Verfahren. Die

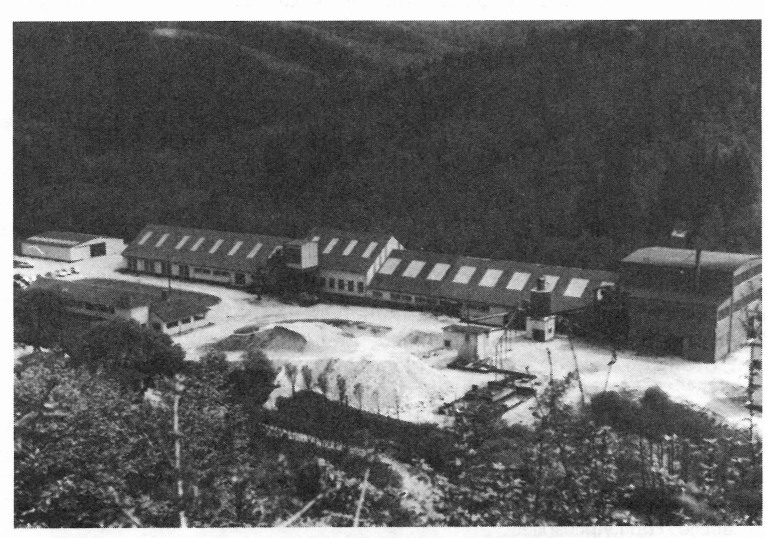
Wahl des Verfahrens hängt von der Gangart, dem Muttergestein, der Erze ab. Die meisten heute verarbeiteten Erze erlauben den Einsatz des kostengünstigeren sauren Aufschlusses mit verdünnter Schwefelsäure ($H_2 SO_4$). Da das Uran meist in der vierwertigen schlechtlöslichen Form vorliegt, muß die Laugung unter oxidierenden Bedingungen erfolgen. Als Oxidationsmittel dienen Braunstein ($Mn O_2$) oder Natriumchlorat ($Na ClO_4$). Der Laugungsvorgang läßt sich am Beispiel eines Pechblendeerzes vereinfacht beschreiben:

$$UO_2 + H_2SO_4 + \frac{1}{2} O_2 \rightarrow UO_2(SO_4) + H_2O$$

Für die saure Laugung werden pro Tonne Erz zwischen 10—75 kg $H_2SO_4$ und 1—3 kg Oxidationsmittel, jeweils pro Tonne Erz, gebraucht. Die Uranausbringung beträgt über 90 % und wird nach Laugungszeiten zwischen 6 und 12 Stunden erreicht [6].

Das Laugungsprodukt ist eine Trübe, in der das Uran jetzt in gelöster Form enthalten ist. Vor dessen weiterer chemischer Behandlung müssen zuerst die mitgerissenen festen Bestandteile durch Filtern oder mehrstufiges Dekantieren entfernt, danach mitgelöste Fremdelemente, wie Eisen, Kupfer, Blei usw., vom Uran getrennt werden. Gleichzeitig mit der Reinigung der Uranlösung, die entweder durch Ionenaustauch- und/oder Flüssigextraktionsverfahren erfolgt, wird die Urankonzentration in der Lösung erhöht.

Bei allen Ionenaustauschverfahren wird der Uranylsulfat-Komplex bevorzugt vor den Fremdelementen aufgenommen. Wird das Uranylion wieder aus dem beladenen Austauscher ausgewaschen (eluiert), so erhält man sehr reine Uranlösungen.



*Uranerz-Aufbereitung* Foto: Gewerkschaft Brunhilde

Bei der Flüssig- oder Solventextraktion werden organische Lösungsmittel[1]), die mit Schwerbenzin verdünnt sind, mit der sauren uranhaltigen Lösung innig vermengt. Bei diesem Vermengungsvorgang wandert das Uran bevorzugt in das organische Lösungsmittel, während die Fremdelemente in der ursprünglichen (anorganischen) Trägerlösung verbleiben. Die jetzt mit Uran beladene organische Phase trennt sich später selbsttätig wieder von der anorganischen Phase, ähnlich wie Öl und Wasser dies tun würden. Nach diesem Absetzungsvorgang wird das Uran durch anorganische Chemikalien[2]) rückextrahiert. Aus diesen Lösungen wird das Uran dann schließlich ausgefällt durch Zugabe von Magnesia (MgO), Natronlauge (NaOH) oder Ammoniak ($NH_3$). Das Fällungsprodukt wird eingedickt, gewaschen, getrocknet und verpackt. Dieses Urankonzentrat trägt international seiner kräftig gelben Farbe wegen den Namen „Yellow Cake". Es besteht aus Uransalzen (Uranaten), enthält 70—75 % Uran und weist noch geringe Verunreinigungen von etwa 2—3 % auf.

Wenn die Gangart, das Muttergestein des Uranerzes, einen hohen Karbonatanteil hat, würde der Säureverbrauch unwirtschaftlich hoch. Daher wird bei derartigen Erzen der alkalischen Laugung der Vorzug gegeben. Als Laugungsmittel wird eine Mischung aus Natriumkarbonat/Natriumbikarbonat verwendet:

$$UO_2 + \frac{1}{2}O_2 + Na_2CO_3 + 2\,NaHCO_3 \rightarrow Na_4UO_2(CO_3)_3 + H_2O$$

Die alkalische Laugung arbeitet wesentlich selektiver als das vorbeschriebene saure Verfahren, so daß kaum Fremdelemente in Lösung gehen. Daher kann das Uran nach der mechanischen Klärung durch Filtern oder Dekantieren unmittelbar durch Zugabe von Natronlauge als Natriumuranat ausgefällt werden. Nach nochmaliger Filterung, Trocknung und Verpackung ist es als „Yellow Cake" versandfertig. Nachteile des alkalischen Verfahrens sind seine höheren Kosten, die durch den notwendigen höheren Ausmahlungsgrad des Erzes, durch geringere Uranausbringung (kleiner 90%) und durch geringere Laugungsgeschwindigkeit bedingt sind.

Neben den vorab beschriebenen klassischen Laugungsverfahren werden seit einiger Zeit vereinfachte und damit billigere Verfahren erprobt, die auch die Nutzung ärmerer Erze erlauben würden [nach 6]:

- Die Haufenlaugung von grobkörnigem Erz übertage
- die Laugung untertage in Form der Kammerlaugung oder In-situ-Laugung
- die bakterielle Laugung in Form der Haufen- oder Kammerlaugung.

Das Endprodukt Yellow Cake ist bei allen heute großtechnisch eingesetzten Aufbereitungsverfahren ein Uranat oder ein Gemisch von verschiedenen Uranaten mit jeweils unterschiedlichen Urangehalten zwischen 70 und 75%. Um die hinsichtlich des Urangehaltes unterschiedlichen Produkte vergleichbar zu machen, hat man das stabile Oxid des Urans, das

---

1) Als organische Lösungsmittel kommen in Betracht: Alkylphosphorsäure, Alkylamine, Tributylphosphat

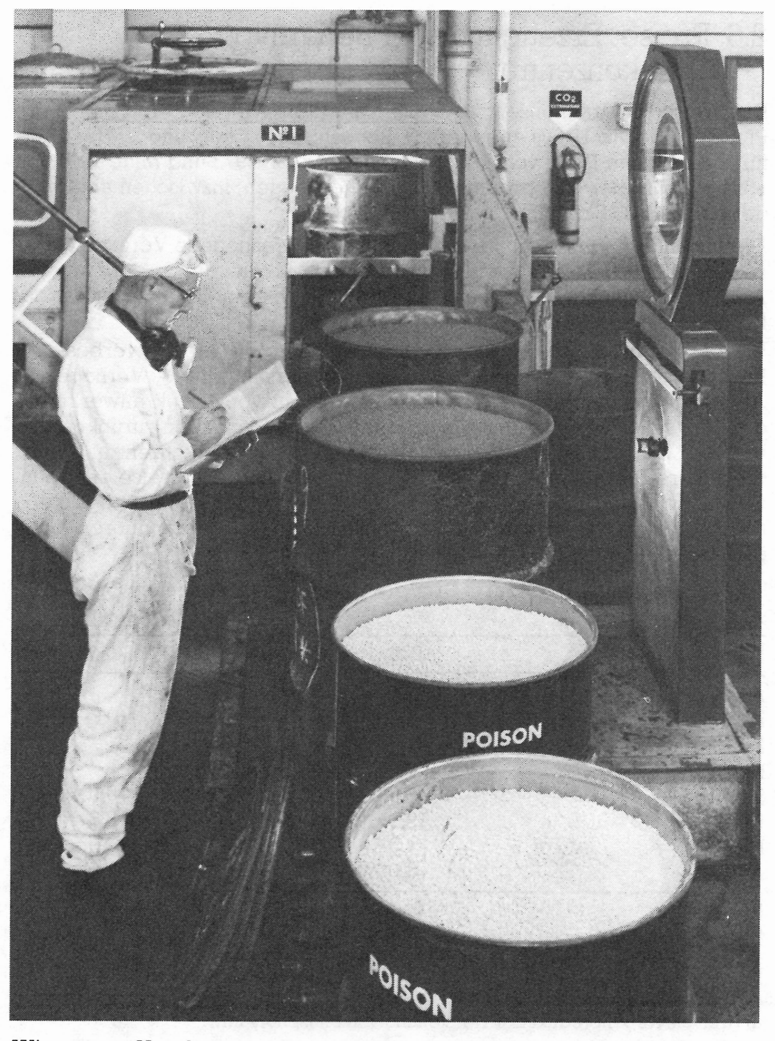


2) Salzsäure, Sodalösungen, angesäuertes Wasser und Kochsalzlösungen

$U_3O_8$, als Vergleichsbasis gewählt. Diese Tatsache führt zu dem weitverbreiteten Irrtum, daß es sich beim Yellow Cake um $U_3O_8$ handele.

Das für die nachfolgende Konversion zu Uranhexafluorid bestimmte Urankonzentrat ist ein Produkt von lediglich technischem Reinheitsgrad und muß etwa folgenden Spezifikationen genügen:

Allgemeines: Urangehalt mindestens 60%
rieselfähiges Pulver oder Granulat
Feuchtigkeit nicht höher als 10 Gew.%




*Wiegen von Urankonzentrat* Foto: BNFL

Grenzen der zulässigen Verunreinigungen in % von $U_3O_8$:

| | |
|---|---|
| Vanadium | 1,0 % |
| Phosphat | 6,0 % |
| Bor | 0,2 % |
| Arsen | 2,0 % |
| Sulfat | 10,0 % |
| Carbonat | 2,0 % |
| Molybdän | 0,6 % |
| Silizium | 4,0 % |
| Brom, Chlor, Fluor u. Jod insgesamt | 0,5 % |

## 2.6 Preise, Erzeugung und Bedarf von Urankonzentrat

Die Preise für Urankonzentrat werden auf dem Weltmarkt mit Dollar pro Pfund $U_3O_8$ (\$/lb $U_3O_8$) angegeben. Bei sofortiger Lieferung ist der Preis für Natururan in Form von Yellow Cake zwischen 1973 und Mitte 1979 von etwa 5 \$ auf über 42 \$ pro Pfund $U_3O_8$ angestiegen, inzwischen aber wieder auf etwa 25 \$ gefallen.

Dies ist unter anderem auf höhere Suchkosten, gestiegene Verarbeitungskosten und die Marktsituation zurückzuführen, die durch den rapiden Abbau des bis 1973 bestehenden Überangebots an Urankonzentrat gekennzeichnet war.

Durch die gestiegenen Weltmarktpreise und die damit verbesserte Ertragslage der Uranproduzenten wurden verstärkt neue Vorhaben in Angriff genommen. Andererseits ist der Zubau von Kernkraftwerken in der westlichen Welt hinter den ursprünglichen Planungen zurückgeblieben. Der daraus sich ergebende Minderbedarf an Urankonzentrat läßt für die nähere Zukunft einen ruhigeren Markt und sinkende Preise erwarten. Die aufgrund der bekannten Uranreserven für möglich gehaltene Produktion liegt über dem Natururanbedarf, der dem heute erkennbaren Kernenergiezubau entspricht.

Tab.3: Maximal erreichbare Uranproduktion aus bekannten Quellen in 1000 Tonnen Uran

| Land | 1978 | 1990 | 2000 | 2010 | 2020 | 2025 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| Australien | 0,6 | 20,0 | 10,0 | — | — | — |
| Kanada | 7,2 | 15,5 | 12,5 | 10,7 | 10,5 | 10,4 |
| Frankreich | 3,5 | 4,4 | 1,6 | — | — | — |
| Namibia | 4,1 | 5,0 | 4,6 | — | — | — |
| Südafrika | 6,5 | 10,4 | 10,0 | 10,0 | 10,0 | 10,0 |
| USA | 19,9 | 40,8 | 51,6 | 40,7 | 12,3 | — |
| Niger | 4,0 | 8,5 | 5,5 | — | — | — |
| Andere | 3,0 | 6,3 | 11,0 | 9,5 | 11,0 | — |
| Insgesamt | 48,8 | 110,9 | 106,8 | 70,9 | 43,8 | 20,4 |
| Phosphate[a)] | 1,0 | 5,0 | 8,0 | 12,0 | 14,0 | 16,0 |
| Insgesamt | 49,8 | 115,9 | 114,8 | 82,9 | 57,8 | 36,4 |

a) Uran als Nebenprodukt der Herstellung von Phosphorsäure.

Quelle: INFCE-Bericht der Arbeitsgruppe 1

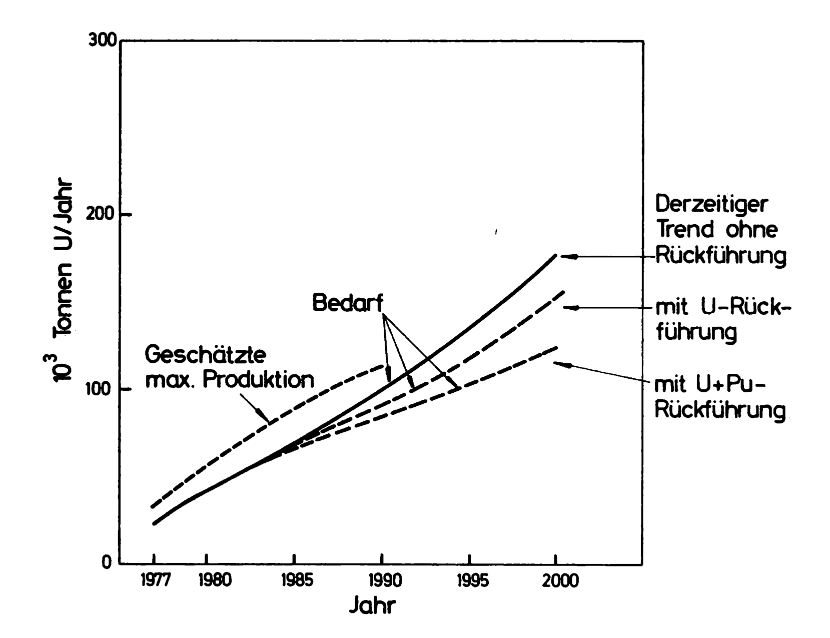



Abb. 8: Uranangebot und -nachfrage

Wichtig ist auch die Tatsache, daß eine Reihe uranreicher Länder keine oder nur geringe nukleare Ausbauprogramme haben, so daß die produzierten Mengen tatsächlich exportiert werden können. Dies trifft in erster Linie auf Australien und auf einige afrikanische Länder zu.

Literatur zu Kapitel 2


[1] RAMDOHR, P.: Was man über das Naturvorkommen des Urans wissen sollte
Uranschau, Gesellschaft für Kernforschung mbH. Karlsruhe 1971 (vergriffen)

[2] FUCHS, H.D.: Exploration und Gewinnung von Uran
Referat der Informationstagung „Die Versorgung Europas mit Kernbrennstoffen" vom 5./6. März 1979 in Zürich

[3] KELLER, C., de ALLELUIA, J.B.: Plutonium und andere schwere Radioelemente in der Natur
Chemikerzeitung, 103 Jahrg. 1979, Nr. 4

[4] NN: International Fuel Cycle Evaluation (INFCE), Fuel and Heavy Water Availability, Report of Working Group 1, IAEA Austria/January 1980

[5] NN: Nukem-Marktbericht über den Kernbrennstoff-Kreislauf, August 1979

[6] GEIER, H.: Übersicht über Verfahren der Uranerzverarbeitung
Chemikerzeitung, 102 Jahrg. 1978, Nr. 3

[7] KLEIN, F.: Uranexploration, Bergbau und Technik der Uranerzaufbereitung
Schriftenreihe Kernthemen, Hrsg. Deutsches Atomforum Bonn 1978

# 3. Konversion und Urananreicherung

Der „Yellow Cake", das Endprodukt der Urangewinnung, ist ein Produkt von technischer Reinheit. Das darin enthaltene Uran ist Natururan, d.h. Uran mit der Isotopenzusammensetzung von 99,28% U 238, 0,72% U 235 und Spuren von U 234.

Für den Einsatz in Kernreaktoren ist erstens eine wesentlich höhere Reinheit erforderlich. Verunreinigungen des Urans könnten störende Reaktionen im Brennstoff und am Hüllrohr auslösen und zu unerwünschten Neutronenabsorptionsprozessen führen.

Zweitens muß für die Verwendung in Leichtwasserreaktoren die Isotopenzusammensetzung des Urans aus neutronenphysikalischen Gründen verändert werden. Der Gehalt des spaltbaren Isotops U 235 muß auf 2,5 bis 3% erhöht werden, damit in den Reaktoren dieser Kernkraftwerke eine Kettenreaktion ablaufen kann.

Für diese Isotopenanreicherung werden z.Z. Verfahren (Diffusion, Zentrifugieren und Umlenken eines Gasstrahls = Trenndüseneffekt) verwendet, die alle eine gasförmige Uranverbindung ($UF_6$ = Uranhexafluorid) als Prozeßmedium erfordern.

Unter Konversion versteht man die Umwandlung der Uranverbindungen im Erzkonzentrat zu Uranhexafluorid. Gleichzeitig wird dabei das Uran von seinen Verunreinigungen befreit. Mit der Urananreicherung wird eine teilweise Verschiebung der Isotopenzusammensetzung des Natururans bis zum erforderlichen Isotopengehalt an U 235 erreicht.

## 3.1 Konversion zu Uranhexafluorid ($UF_6$)

Ziel der Konversion ist die Umwandlung des Urans zu $UF_6$ unter gleichzeitiger Verbesserung der Produktreinheit.

Das von den Minengesellschaften gelieferte Erzkonzentrat, „Yellow Cake", ist chemisch kein einheitlicher Stoff. Seine Zusammensetzung — eine Mischung von Uranaten — hängt vielmehr von der abgebauten Erzart und der Chemie der Erzaufbereitung ab. Urangehalt sowie Art und Konzentration der Verunreinigungen schwanken. Für die Herstellung des Kernbrennstoffs ist jedoch ein Produkt von hoher Reinheit und gleichbleibender Zusammensetzung erforderlich.

Für die nachfolgende Urananreicherung ist als Zwischenprodukt eine Uranverbindung notwendig, die

- bei möglichst niedrigen Temperaturen als Gas vorliegt, da alle Anreicherungstechniken ein Gas als Prozeßmedium verwenden;
- neben Uran keine anderen Stoffe enthält, die Isotopenvielfalt zeigen, weil diese die Urananreicherung stören würden;
- chemisch und thermisch stabil ist, damit bei der weiteren Verarbeitung keine störende Zersetzung auftritt;
- geringe Korrosionswirkung zeigt, damit die Apparaturen nicht von dieser Verbindung angegriffen werden.

Uranhexafluorid ($UF_6$) erfüllt diese Bedingungen weitgehend: Es verdampft (sublimiert) unter Normaldruck bereits bei 56,5° C, enthält in der Verbindung neben Uran nur das Element Fluor, von dem nur das eine stabile Isotop F 19 in der Natur vorkommt, und es ist chemisch und thermisch genügend stabil.

$UF_6$ greift zwar Metalle unter Fluoridbildung an. Bei den niedrigen Temperaturen, die bei der weiteren Verwendung des Uranhexafluorids in den Anreicherungsanlagen vorherrschen, ist der korrosive Angriff metallischer Oberflächen durch $UF_6$ jedoch beherrschbar.

### 3.1.1 Konversionsverfahren

Die Verfahren, die zur Herstellung von Uranhexafluorid im technischen Maßstab angewendet werden, unterteilt man in „nasse" und „trockene" Verfahren. Eine schematische Darstellung zeigt Abb. 9 auf S. 32.

Merkmal der „nassen" Verfahren ist, daß bei ihnen ein naßchemisches Verfahren zur Reinigung des Urans vor der Fluorierung zu $UF_6$ durchgeführt wird.

Beim „trockenen" Verfahren wird dagegen das Uran zuerst in $UF_6$ umgewandelt. Erst danach wird das Uranhexafluorid durch fraktionierte Destillation gereinigt. Bei dieser Konversionstechnik werden also keine naßchemischen Verfahrensschritte verwendet.

Im industriellen Maßstab werden zwei „nasse" Konversionsverfahren eingesetzt.

Bei beiden wird zunächst das Erzkonzentrat in warmer Salpetersäure gelöst. Das Uran geht dabei als Uranylnitrat in Lösung, die Verunreinigungen setzen sich teilweise ab oder werden als Nitrate gelöst. Bei der nachfolgenden Lösungsmittelextraktion wird das Uran von diesen gelösten Verunreinigungen getrennt.

Das Prinzip der Lösungsmittelextraktion, das im Abschnitt 6 „Wiederaufarbeitung" bei der Behandlung des Purex-Prozesses eingehender dargestellt ist, besteht darin, daß zwei Lösungsmittel, die sich nicht mischen und die verschiedene Lösungseigenschaften zeigen, in innigen Kontakt miteinander gebracht werden. Zur Uranreinigung wird eine salpetersaure, wäßrige Phase verwendet, in der zunächst das Uran und die Verunreinigungen gelöst sind, und ein organisches Lösungsmittel, Tributylphosphat (abgekürzt TBP). Bei Kontakt der beiden Lösungsmittel löst sich das Uranylnitrat fast vollständig im TBP, wandert von der wäßrigen Phase in das organische Lösungsmittel. Die Verunreinigungen dagegen verbleiben in der wäßrigen Phase, weil sie nicht im TBP löslich sind. Da die beiden Lösungsmittel sich nicht mischen, trennen sie sich nach dem Kontakt wieder: Das leichtere organische Lösungsmittel, jetzt mit Uran beladen, schwimmt auf, die wäßrige Phase mit den gelösten Verunreinigungen setzt sich ab. Damit ist auch das Uran von seinen Verunreinigungen getrennt.

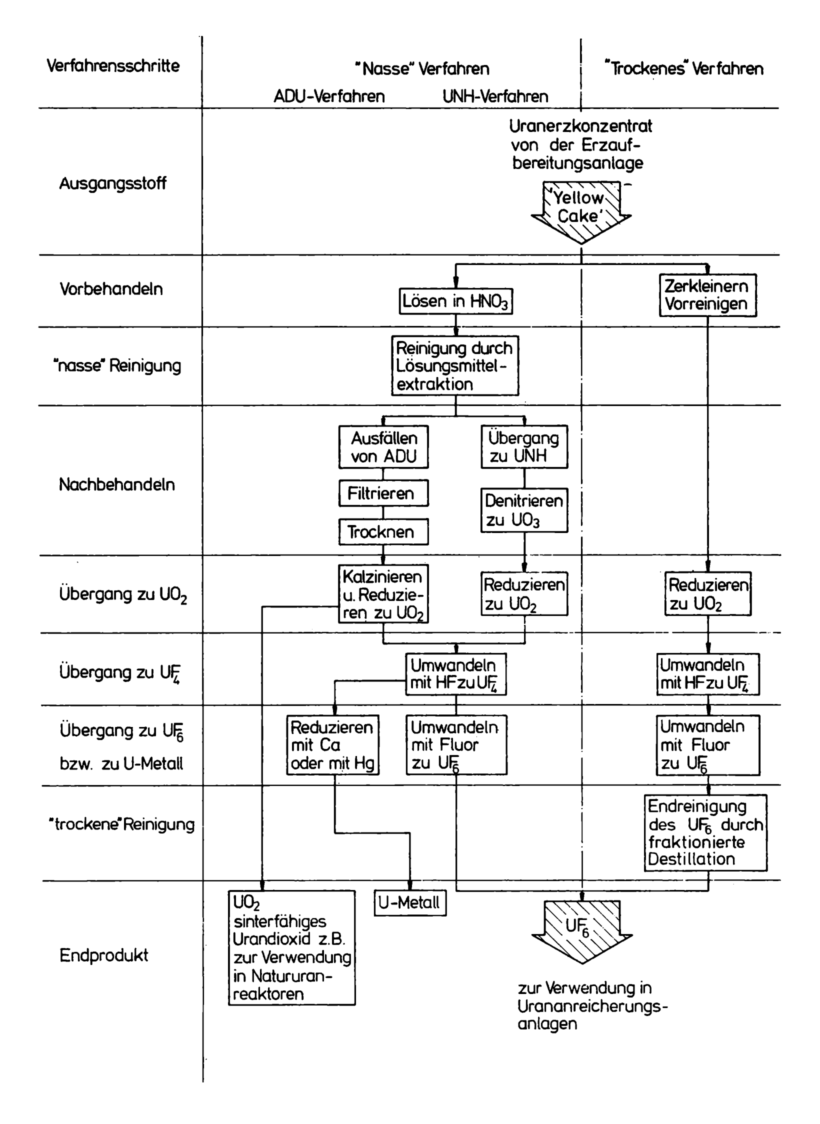
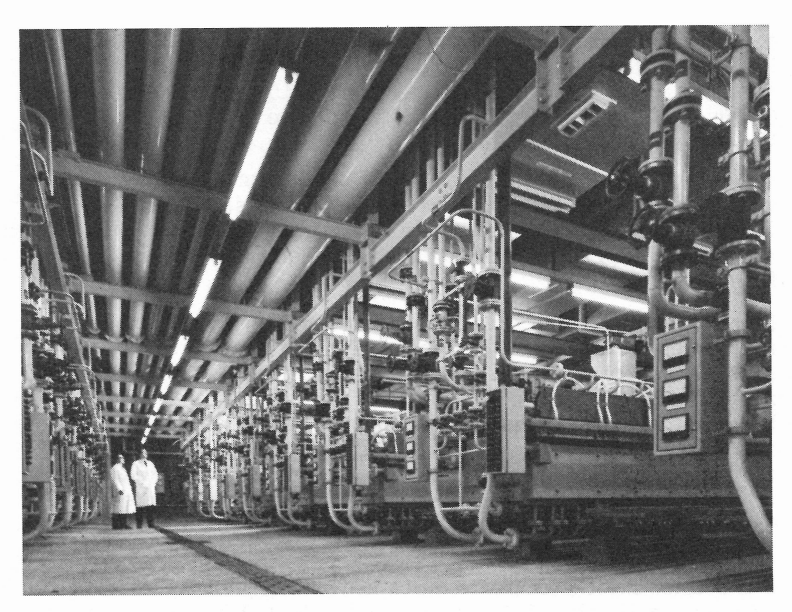



Abb. 9: Schematische Darstellung der Konversionsverfahren



*Fluorierungszellen in der Konversionsanlage der British Nuclear Fuel Ltd.*
Foto: BNFL

In der technischen Anwendung wird dieser Prozeß kontinuierlich im Gegenstromverfahren betrieben. Die Lösungseigenschaften der Lösungsmittel können durch Temperatur und Azidität beeinflußt werden. So läßt sich das Uran bei erhöhter Temperatur und bei Zugabe schwacher Salpetersäure aus dem TBP wieder auswaschen. Das Uran wandert von der organischen zurück in die wäßrige Phase. Man erhält eine hochreine schwach salpetersaure Uranylnitratlösung als Zwischenprodukt. Das organische Lösungsmittel wird zurückgewonnen und wieder in den Reinigungsprozeß eingespeist.

Nach der Reinigung des Urans durch die Lösungsmittelextraktion muß zunächst der Stickstoff wieder entfernt werden („Denitrieren"), bevor die Fluorierung, die Umwandlung zu $UF_6$, durchgeführt werden kann. Deswegen findet eine Umwandlung des Uranylnitrats zu Urandioxid ($UO_2$) statt. Hier unterscheiden sich die beiden „nassen" Verfahren.

In dem einen Verfahren, das von der französischen Firma COMURHEX verwendet wird, wird Ammoniumdiuranat (ADU) als Zwischenprodukt erzeugt. Das ADU fällt durch Einleiten von Ammoniak in die Uranylnitratlösung aus. Danach wird es gewaschen, filtriert und getrocknet. Durch Erhitzen unter Luftzutritt wird das ADU zu Urantrioxid ($UO_3$) denitriert und weiter mit Hilfe von Wasserstoff zu Urandioxid ($UO_2$) reduziert.

In dem anderen „nassen" Verfahren, das von den englischen BNFL-Werken in Springfields, von den amerikanischen Kerr-McGee-Werken und von der kanadischen Gesellschaft Eldorado Nuclear verwendet wird,

geht man über das Uranylnitrathexahydrat (abgekürzt UNH), das durch Eindampfen der Uranylnitratlösung entsteht, die nach der „nassen" Uranreinigung anfällt. Das UNH wird thermisch zu Urantrioxid ($UO_3$) zersetzt (kalziniert). Danach erfolgt schließlich wieder eine Reduktion mit Hilfe von Wasserstoff zu Urandioxid ($UO_2$).

Der weitere Weg vom $UO_2$ zum $UF_6$ ist bei beiden „nassen" Verfahren wieder der gleiche: Durch Einwirken von Fluorwasserstoff (HF) wird das $UO_2$ zunächst in $UF_4$ (sog. „green salt") umgewandelt. Die weitere Fluorierung zu $UF_6$ kann nur durch Anwenden von elementarem Fluor durchgeführt werden.

Das „trockene" Verfahren zur Herstellung von $UF_6$ wird nur von der amerikanischen Firma „Allied Chemical" angewendet. Zur Durchführung wird die Fließbettechnik verwendet. Das angelieferte Erzkonzentrat muß zunächst so zerkleinert werden, daß es in Fließbettreaktoren weiter verarbeitet werden kann. Im Erzkonzentrat liegt das Uran in Form von Uranaten vor. Im ersten Fließbettreaktor wird das Uran zu Urandioxid ($UO_2$) reduziert. Dann erfolgt die Umwandlung des $UO_2$ zu $UF_4$ durch Einwirken von Fluorwasserstoff, ebenfalls in einem Fließbettreaktor. Ein großer Teil der Verunreinigungen, die im Erzkonzentrat enthalten sind, wird bei diesen Prozeßschritten bereits ausgeschieden.

Das Urantetrafluorid ($UF_4$) wird durch Reaktion mit elementarem Fluor zu gasförmigem Uranhexafluorid umgewandelt. Viele Verunreinigungen bilden dabei nichtflüchtige Verbindungen und können so als feste Asche zurückgehalten werden. Die letzten Verunreinigungen werden schließlich durch fraktionierte Destillation des $UF_6$ entfernt.

## 3.1.2 Eigenschaften des Uranhexafluorids

Die „nassen" Verfahren können, dank der zuerst durchgeführten Abtrennung der Verunreinigungen, auch nuklear reine Zwischenprodukte erzeugen — etwa $UO_2$ zur Verwendung als Kernbrennstoff in Natururanreaktoren, z.B. den kanadischen CANDU-Reaktoren, oder $UF_4$ als Ausgangsmaterial für die Herstellung von metallischem Uran, z.B. für die Brennelemente der MAGNOX-Reaktoren, oder für Sonderzwecke.

Alle Materialien, die nach der Uranreinigung in den verschiedenen Verfahrensschritten der „nassen" Verfahren verwendet werden, müssen sehr rein sein, damit nicht durch sie wieder neue Verunreinigungen des Urans verursacht werden.

Mit den „trockenen" Verfahren läßt sich ein extrem reines $UF_6$ erzeugen, da hier die endgültige Reinigung (fraktionierte Destillation) erst als letzter Verfahrensschritt durchgeführt wird. Allerdings stellt das „trockene" Verfahren höhere Reinheitsanforderungen an das angelieferte Uranerzkonzentrat als die „nassen" Verfahren.

Die durch die nachfolgende Anreicherung bedingten Reinheitsanforderungen an das $UF_6$ werden jedoch von allen Konversionsverfahren erfüllt. Gefordert wird, daß das Produkt mindestens 99,5 % reines $UF_6$ enthält.

Uranhexafluorid, das Endprodukt der Konversion, ist eine farblose, kristalline Substanz, die unter Normaldruck bereits bei einer Temperatur von 56,5° C ohne zu schmelzen direkt in die Gasphase übergeht.

Diese Eigenschaft macht man sich bei der Handhabung des $UF_6$ zunutze: Als Gas kann $UF_6$ durch Filter leicht von mitgeführten Feststoffen befreit werden, von anderen Fremdgasen kann es durch Ausfrieren in Kühlfallen abgetrennt werden.

Natururanhexafluorid wird in Stahldruckbehältern, die etwa 13 t $UF_6$ (entsprechend rd. 8,8 t U) fassen, transportiert und gelagert.




*Uranhexafluorid-Behälter vor dem Abtransport zur Urananreicherungsanlage* Foto: BNFL

## 3.1.3 Wirtschaftliche Gesichtspunkte

In der westlichen Welt bieten fünf Firmen Konversionsdienste an (vgl. Tab. 4). Ihre Anlagen haben insgesamt einen nominalen Durchsatz von 46000 t Uran pro Jahr.

Tab. 4: $UF_6$-Produktion

| Konverter | t U/a 1979 | 1981 | 1983 | 1985 |
|---|---|---|---|---|
| BNFL, Großbritannien | 7500 | 9500 | 9500 | 9500 |
| Allied Chemical, USA | 12700 | 12700 | 12700 | 12700 |
| Kerr McGee, USA | 9090 | 9090 | 9090 | 9090 |
| Comurhex, Frankreich | 13000 | 13000 | 14000 | 15000 |
| Eldorado, Kanada | 4500 | 6750 | 13500 | 13500 |
| Total | 46790 | 51040 | 58790 | 59790 |

(Nukem-Marktbericht über den Kernbrennstoffkreislauf, Sonderbericht Großbritannien, Okt. 1979)

Daneben bietet auch die UdSSR über ihre Staatshandelsgesellschaft Techsnabexport Konversionsdienste an, aber nur im Zusammenhang mit Urananreicherungsverträgen, die bei ihr kontrahiert werden.

Da der Bedarf an Konversionsleistung für die westliche Welt derzeit unter 30000 t Uran pro Jahr liegt, herrscht ein Angebotsüberschuß von rd. 10000 t U/a Konversionsleistung. Die Preise für Konversion haben sich in den letzten fünfzehn Jahren fast verdoppelt (Mitte 1979 etwa US-$ 4,50—5,00/kg U gegenüber US-$ 2,00/kg U im Jahr 1964).

Tab. 5: Uran-Konversionsanlagen der westlichen Welt.

| Land | Firma | Ort | Betriebsbeginn | Verfahren | Produkt | $UF_6$-Kapazität im Jahr 1979 in metrischen Jahrestonnen U im $UF_6$ |
|---|---|---|---|---|---|---|
| USA | Allied Chemical Corporation | Metropolis (Illinois) | 1959 | trocken | $UF_6$ | 12700 |
| | Kerr-McGee Corporation | Sequoyah (Oklahoma) | 1970/71 | naß | $UF_6$ | 9090 |
| Kanada | Eldorado Nuclear Ltd. | Port Hope (Ontario) | 1970 | naß | U, $UO_2$, $UF_6$ | 4500 |
| England | British Nuclear Fuel Ltd. | Springfields | 1960/68 | naß | U, $UF_6$ | 7500 |
| Frankreich | Comurhex | Malvesi und Pierrelatte | 1964 | naß und trocken | U, $UF_6$ | 13000 |

Für die Zukunft sind bei den einzelnen Firmen z. T. beträchtliche Kapazitätserweiterungen geplant. Uranexportländer (Südafrikanische Union und Australien) erwägen den Bau von Konversionsanlagen, um den Rohstoff Uran so weit wie möglich im eigenen Land zu veredeln. Diese Anlagen könnten aber nicht vor 1985 den Betrieb aufnehmen. Prognosen von Konversionsnachfrage und -angebot ergeben, daß der Angebotsüberschuß abnimmt und daß ab Mitte 1981 ein Engpaß bei der Konversion auftreten könnte. Sollte es sich abzeichnen, daß diese Situation tatsächlich eintritt, könnte jedoch durch mehrere Maßnahmen (z. B. Kapazitätserweiterung, Verringern des „Tails Assay" bei der Anreicherung, verstärkte Auftragsvergabe an die UdSSR etc.) rechtzeitig Abhilfe geschaffen werden.

## 3.2 Urananreicherung

Uranhexafluorid, das Endprodukt der Urankonversion, ist ein Gemisch aus $U^{238}F_6$ und $U^{235}F_6$. Aufgabe der Anreicherung ist es, dieses Gemisch von zwei chemisch gleichartigen Gasen teilweise zu entmischen. Dadurch wird ein Uranhexafluorid gewonnen, in dem der Anteil des Uranisotops U 235 höher ist als im Ausgangsstoff Natururan: Im Produkt ist das Uran angereichert an U 235.

Da beide Isotope U 235 und U 238 chemisch völlig gleichartig reagieren, sich lediglich in ihrer Masse unterscheiden, werden physikalische Verfahren für die Anreicherung eingesetzt, die den geringen Massenunterschied dieser Isotope ausnutzen können.

### 3.2.1 Grundprinzipien und Begriffe der Isotopentrennung

Unabhängig vom speziellen Anreicherungsverfahren gibt es einige Begriffe, die hier zunächst dargestellt und erläutert werden, bevor auf die Verfahren im einzelnen eingegangen wird.

Zur genauen Erklärung dieser Begriffe sind einige Formeln notwendig. Wer nur am Prinzip der Anreicherungsverfahren interessiert ist, kann diese Erklärungen überspringen und direkt zum Teil 3.2.2 übergehen.

Als Trennelemente werden zusammenfassend alle die Geräte bezeichnet (seien es Zentrifugen, Trenndüsen, Diffusionskammern oder andere Apparate), in denen der Vorgang der Uranisotopentrennung stattfindet. Dazu durchströmt das Gas $UF_6$ das Trennelement.

Der eingespeiste $UF_6$-Strom E mit dem $U^{235}$-Gehalt $x_E$ wird dabei in zwei Teilströme P und A zerlegt. Im Produktstrom P ist der $U^{235}$-Gehalt $x_P$ höher $x_P > x_E$, im Abfallstrom A ist der $U^{235}$-Gehalt $x_A$ kleiner $x_A < x_E$ als im eingespeisten $UF_6$-Strom.

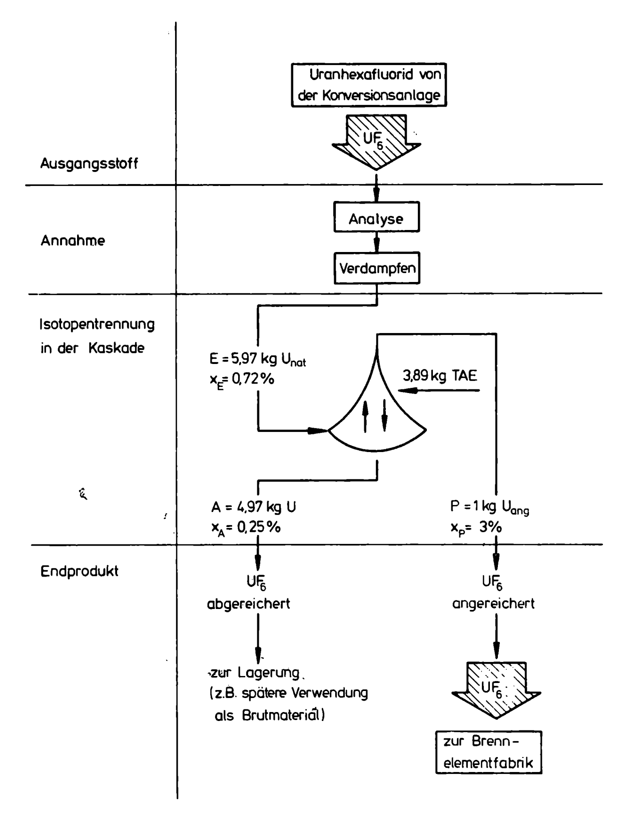



Abb. 10: Schematische Darstellung der Urananreicherung

Da im Trennelement Uran weder erzeugt noch verbraucht wird, gelten einfache Bilanzgleichungen. Mit ihrer Hilfe errechnet sich der spezifische Uranbedarf c zu

$$\frac{E}{P} = c = \frac{x_P - x_A}{x_E - x_A}$$

Diese Beziehung gibt an, wieviel Natururan (mit einem $U^{235}$-Anteil von $x_E = 0{,}7\,\%$) benötigt wird, um 1 kg angereichertes Uran (z.B. der Anreicherung $x_P = 3\,\%$) herzustellen, wenn Uran mit einem $U^{235}$-Gehalt von weniger als $x_A = 0{,}25\,\%$ als Abfall angesehen und in der Anreicherungsanlage nicht weiter verarbeitet wird. Man errechnet in diesem Beispiel, daß rund 6 kg Natururan notwendig sind, um 1 kg angereichertes Uran herzustellen.

Unter Verwendung der oben eingeführten Konzentrationswerte x kann das Verhältnis R der Anzahl der $UF_6$-Moleküle mit dem leichten Uranisotop U 235 zur Anzahl der Moleküle mit dem Isotop U 238 im Gasstrom angegeben werden.

$$R = \frac{N(U^{235}F_6)}{N(U^{238}F_6)} = \frac{x}{1-x}$$

Als Trennfaktor $\alpha$ eines Trennelements wird der Ausdruck

$$\alpha = \frac{R_P}{R_A} = \frac{x_P}{1-x_P} \Big/ \frac{x_A}{1-x_A}$$

bezeichnet. Der Trennfaktor $\alpha$ drückt also aus, welche Verschiebung der Konzentrationen in einem Trennelement erreicht wird. $\alpha = 1$ bedeutet, daß keine Isotopentrennung stattfindet. Erst die Differenz $\alpha - 1$ zeigt eine Isotopentrennung an. Sie wird als Trenneffekt $\varepsilon$ bezeichnet.

Die Zahlenwerte für den Trenneffekt $\varepsilon$ sind bei den verschiedenen Anreicherungstechniken unterschiedlich groß. Sie sind aber bei allen heute verwendeten Anreicherungsverfahren so klein, daß mit einem Trennelement allein die gewünschte Anreicherung auf rund 3% (ausgehend vom Natururan mit $x_E = 0{,}72\%$) nicht erreicht werden kann. Vielmehr ist es dafür notwendig, mehrere einzelne Trennelemente zu Kaskaden zusammenzuschalten, um die erforderliche Anreicherung zu erreichen.

Das Prinzip einer Kaskade besteht darin, den angereicherten Produktstrom P eines Trennelements der Grundstufe als Eingangsstrom E in ein Trennelement der nächsthöheren Stufe einzuleiten. Dort erfolgt eine weitere Anreicherung. Von Stufe zu Stufe steigt so die Anreicherung $x_P$ im Produktstrom. Aber auch die Abfallströme A enthalten immer noch einen Anteil $x_A$ des gewünschten Isotops U 235. Um dies auszunutzen, wird der Abfallstrom der Trennelemente nicht etwa einfach abgeleitet, sondern dem Eingangsstrom eines Trennelements beigemischt, das „tiefer" in der

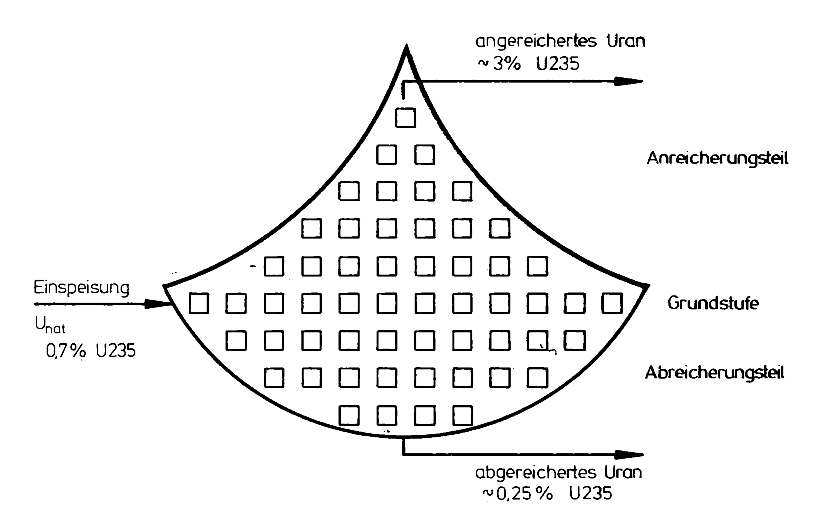



Abb. 11: Anreicherungs-Kaskade

Kaskade liegt. Durch diese Zusammenschaltung einzelner Trennelemente kann auch aus Gasströmen im Abreicherungsteil der Kaskade, für den $x^{(n)} < x_E$ gilt, noch das Isotop U 235 gewonnen werden. Erst wenn der $U^{235}$-Gehalt den Wert $x_A$, gewöhnlich $x_A$ = 0,2 bis 0,3 % (eingestellter Abreicherungsgrad der Anlage, auch als „Tails Assay" bezeichnet) erreicht bzw. unterschreitet, wird das an U 235 verarmte Uran aus der Trennanlage als Abfall abgeleitet.

Die $UF_6$-Durchsatzmengen ändern sich stark von Stufe zu Stufe in der Kaskade. Im oben angeführten Beispiel wurde gezeigt, daß rund 6 kg $U_{nat}F_6$ in die Grundstufe der Anlage eingespeist werden müssen, wenn 1 kg $UF_6$ mit der Anreicherung 3 % als Produkt der „höchsten" Trennstufe der Anlage entnommen wird. Die Auslegung der einzelnen Stufen in der Kaskade berücksichtigt die Unterschiede im Mengendurchsatz. Die Trennelemente werden entsprechend unterschiedlich dimensioniert, oder es werden entsprechend viele Einzelelemente parallel angeordnet (vgl. Abb. 11).

Zur Festlegung einer Anreicherungsaufgabe muß neben Angabe der Produktmenge P und der Produktanreicherung $x_P$ noch die Anreicherung $x_E$ des Ausgangsmaterials (gewöhnlich Natururan mit $x_E$ = 0,72 %) und die Abreicherung $x_A$ für das Abfalluran angegeben werden. Diese Angaben können zu einer Zahl zusammengefaßt werden, indem die dafür notwendige Trennarbeit angegeben wird. Die spezifische Trennarbeit, d.h. die zur Erzeugung von 1 kg angereichertem Uran notwendige Trennarbeit, berechnet sich zu

$$TA = V(x_P) + \frac{A}{P} V(x_A) - \frac{E}{P} V(x_E) = V(x_P) - V(x_A) + c\,\big(V(x_A) - V(x_E)\big)$$

Dabei ist c der oben erklärte spezifische Uranbedarf und V(x) die sogenannte „Wertfunktion"

$$V(x) = (1 - 2x)\ \ln \frac{1-x}{x}$$

Da die spezifische Trennarbeit dimensionslos ist, muß die Trennarbeit die Dimension einer Masse, z. B. Kilogramm oder Tonne, erhalten. Die Angabe „1 kg Urantrennarbeit", gewöhnlich mit 1 kg UTA abgekürzt, darf aber nicht mit der Angabe „1 kg angereichertes Uran" verwechselt werden.

Die Trennarbeit ist nicht nur eine bequeme Zusammenfassung aller Werte, die eine Anreicherungsaufgabe beschreiben. Ihre besondere Bedeutung ergibt sich z. B. auch daraus, daß Anreicherungsverträge immer über die notwendige Trennarbeit abgeschlossen werden und die Preise sich ebenfalls entsprechend dem Trennarbeitsaufwand ergeben. Ebenso wird die Kapazität von Anreicherungsanlagen durch Angabe der Trennleistung beschrieben, d. h. durch Angabe der Trennarbeitseinheiten, die von der Anlage pro Jahr erbracht werden kann (z.B. 1000 t UTA/a).

Zur Veranschaulichung der Begriffe Isotopentrennung, Trennarbeit, „Tails Assay" etc. kann das Saftpressen aus Obst als Beispiel dienen: Die gleiche Menge Obstsaft (angereichertes Uran) kann durch wenig Pressen (geringer Trennarbeitsaufwand) von viel Obst (Natururan) gewonnen werden oder durch starkes Pressen (hoher Trennarbeitsaufwand) von weniger Obst (Natururan). Im ersten Fall enthält das ausgepreßte Obst (Abfalluran)

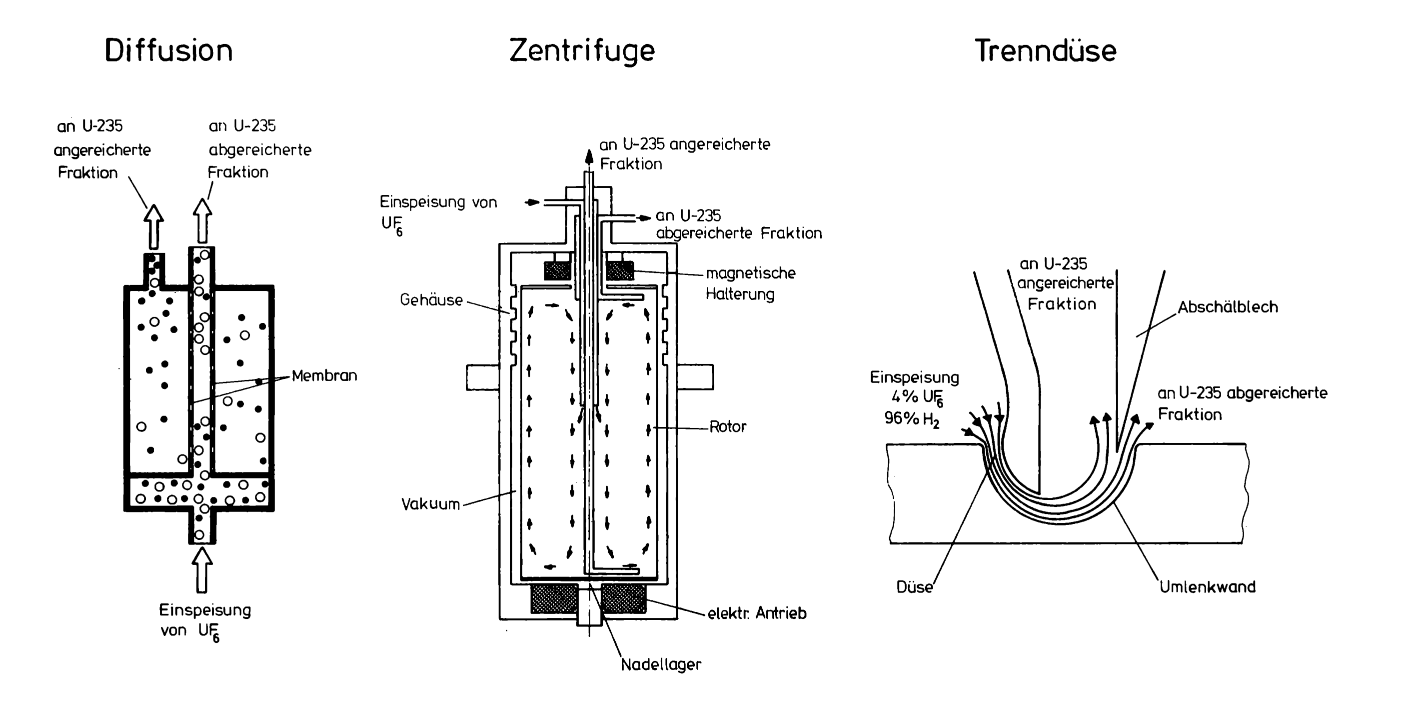



Abb. 12: Schematische Darstellung der Trennelemente der zur Urananreicherung industriell genutzten Isotopentrennverfahren

noch einen hohen Restsaftgehalt (hoher „Tails Assay"), im zweiten Fall einen entsprechend geringeren.

Ist das Pressen sehr viel teurer als das Obst (Trennarbeitspreis teuer im Vergleich zum Preis für Natururan), ist es günstiger, den ersten Weg zu wählen, mit wenig Pressen viel Obst zu verarbeiten. Der Restsaftgehalt ist dann hoch (hoher „Tails Assay"). Der ökonomisch günstigste Wert für den „Tails Assay" ($U^{235}$-Gehalt des Abfallurans) bei der Isotopentrennung hängt also von den Preisen für Trennarbeit und für Natururan ab.

## 3.2.2 Anreicherungsverfahren

Drei Verfahren werden z.Z. zur Urananreicherung im technischen Maßstab eingesetzt: die Gasdiffusion, die Gasultrazentrifuge und die Trenndüse. Daneben wird in Südafrika an der Entwicklung eines gasdynamischen Verfahrens gearbeitet. Noch in der Entwicklung stehen Verfahren, bei denen die Trennung in einem Uranplasma erfolgen soll. Weiter wird an Verfahren gearbeitet, die die Uranisotope mit Hilfe von Lasern trennen, und an Verfahren, die mit chemischen Austauschreaktionen arbeiten.

### 3.2.2.1 Diffusionstechnik

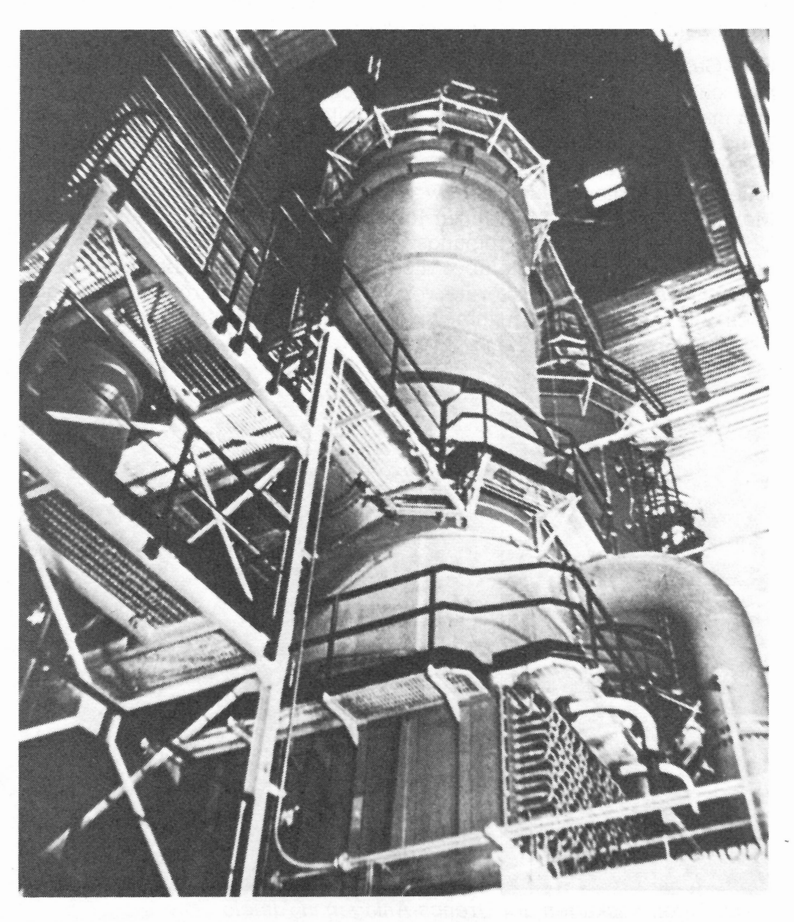
Urananreicherung im technischen Maßstab wurde zuerst mit dem Gasdiffusionsverfahren durchgeführt. Dieses Verfahren beruht darauf, daß Gasmoleküle, die sich in ihrer Masse unterscheiden, mit unterschiedlicher Geschwindigkeit poröse Wände (Membranen) durchdringen, also durch diese Wände hindurchdiffundieren. Die poröse Wand wirkt dabei nicht etwa wie ein Sieb. Vielmehr macht sich hier die unterschiedliche Bewegung der Moleküle bemerkbar. In einem Gas bewegen sich die einzelnen Moleküle ungerichtet hin und her (Brownsche Molekularbewegung). Die leichteren $U^{235}F_6$-Moleküle bewegen sich dabei ein wenig schneller als die schwereren Moleküle mit dem Isotop U 238. Die leichteren Moleküle prallen deswegen häufiger auf die Gefäßwände und treffen dadurch auch häufiger auf Poren in der Wand als die schwereren Moleküle. Dadurch enthält der Gasstrom, der durch die Poren in der Wand hindurchdiffundiert, einen höheren Anteil der leichteren $U^{235}F_6$-Moleküle als der Gasstrom, der nicht durch die poröse Wandung dringt.

Wird diese Tatsache mathematisch erfaßt, so erhält man eine einfache Beziehung, die den Trennfaktor $\alpha$ der Diffusion mit der Molekülmasse M verknüpft.

$$\alpha_{\substack{\text{Diffusion}\\ \text{theoretisch}}} = \sqrt{\frac{M(U^{238}F_6)}{M(U^{235}F_6)}} = 1{,}0043$$

Der theoretisch erreichbare maximale Trennfaktor der Diffusionstechnik ist also recht klein. Deswegen müssen für die Herstellung etwa 3%ig angereicherten Urans aus Natururan rund 1200 Trennstufen hintereinander zu einer Trennkaskade zusammengeschaltet werden.

Axialverdichterpumpen fördern die $UF_6$-Gasströme von Stufe zu Stufe durch die Kaskade. Nach der Kompression gelangt das Gas in den Diffusortank. Dort passiert es zunächst einen Wärmetauscher. Hier wird das durch die Kompression erhitzte Gas wieder abgekühlt. Danach strömt es durch ein System von Röhren, deren Wände die porösen Diffusionsmembranen bilden. Porosität, Wandflächen, Druckdifferenz etc. werden so gewählt, daß etwa die Hälfte des eingespeisten $UF_6$-Stroms die Membranen durchdringt und als angereicherter Produktstrom zum Eingang der nächsthöheren Stufe gepumpt wird. Die $U^{235}$-Anreicherung kommt — wie oben angedeutet — durch die größere Geschwindigkeit zustande, mit der die $U^{235}F_6$-Moleküle die Membranen durchdringen. Die langsameren $U^{238}F_6$-Moleküle durchsetzen die Membran nicht so häufig und verbleiben deswegen bevorzugt im Abfallstrom, der zur nächsttieferen Stufe zurückgepumpt wird.



*Trennstufe der französischen Diffusionsanlage* Foto: Eurodif

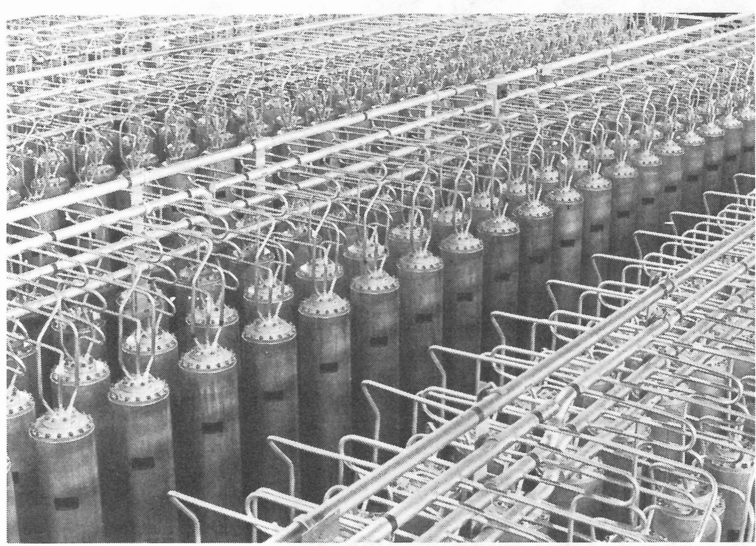
Kernstück der Diffusionsanlage sind die Membranen. Es kommt entscheidend darauf an, daß sie möglichst viele Poren gleichen Durchmessers ($\varnothing \approx 10^{-5}$ mm) aufweisen und daß das Membranmaterial mechanisch stabil und beständig gegen $UF_6$ ist.

Während bei amerikanischen Trennanlagen Diffusortanks und Kompressoren getrennt angeordnet sind, ist für die neueren europäischen Anlagen eine integrierte Bauweise gewählt worden, die Diffusortank, Wärmetauscher und Kompressor einer Stufe zu einer Einheit zusammenfaßt (Foto S. 43).

## 3.2.2.2 Zentrifugentechnik

Es liegt nahe, Komponenten unterschiedlicher Masse durch Zentrifugieren zu trennen. Schon in den 30er Jahren konnte eine Isotopentrennung durch Zentrifugieren nachgewiesen werden.

Eine Gaszentrifuge heutiger Technik zur Uranisotopentrennung ist schematisch in Abb. 12 dargestellt. Der Rotor läuft, elektrisch angetrieben und magnetisch gehalten, auf einem Nadellager. Das $UF_6$-Gas wird in der Nähe der Rotorachse etwa auf halber Höhe in den Rotor eingespeist. Der Rotor reißt das Gas mit, so daß es etwa mit der gleichen Geschwindigkeit rotiert. Durch diese Rotationsbewegung werden die schwereren $U^{238}F_6$-Moleküle stärker nach außen zur Rotorwand getrieben als die leichteren $U^{235}F_6$-Moleküle. Durch Strömungswiderstände an den Enden des Rotors und ein Temperaturgefälle über die Rohrlänge wird darüber hinaus eine axiale Gasströmung im Rotor hervorgerufen. Das Gas strömt in Achsnähe nach unten und am Rotormantel wieder nach oben zurück. Dieser Gegen-



*Zentrifugen-Kaskaden der Urenco-Anlagen in Almelo*

Foto: Uranit/C. Severin

strom verstärkt den Isotopentrenneffekt der Zentrifuge beträchtlich und bewirkt, daß sich die leichte $U^{235}$-Komponente unten am Rotorboden anreichert, die schwere $U^{238}$-Komponente dagegen am oberen Rotorende. Durch Entnehmerröhren wird der mit U 235 angereicherte Produktstrom unten nahe der Rotorwand entnommen, ganz ähnlich wird der Abfallstrom am oberen Ende des Rotors abgeleitet.

Beim Betrieb der Zentrifuge baut sich ein Druckgefälle zwischen der Einspeisung und den Gasauslässen auf, das zur Gasförderung in der Kaskade ausreicht. Besondere Pumpen und Kompressoren sind in der Zentrifugenkaskade deswegen nicht nötig.

Da die Trennleistung, d.h. die Anzahl der Trennarbeitseinheiten pro Zeiteinheit, bei der Zentrifuge etwa mit der vierten Potenz der Umfangsgeschwindigkeit des Rotormantels ansteigt und etwa proportional der Rotorlänge, werden längliche, walzenförmige Rotoren aus hochfesten Materialien gebaut. Sie laufen im Vakuum, um energieverbrauchende Reibungsverluste möglichst zu vermeiden.

### 3.2.2.3 Trenndüsentechnik

Auch diese Technik nutzt Zentrifugalkräfte zur Isotopentrennung aus, die hier aber durch die scharfe Umlenkung eines Gasstrahls hervorgerufen werden. Ein Gemisch aus etwa 96% Wasserstoffgas und 4% $UF_6$-Gas expandiert durch eine schlitzförmige Düse und wird an einer Wand um etwa 180° umgelenkt. In dieser gekrümmten Strömung werden die schweren $U^{238}F_6$-Moleküle bevorzugt nach außen abgelenkt. Ein Messer zerteilt den Gasstrom und schält den äußeren, an U 235 verarmten Teilstrom ab (vgl. Abb. 12).

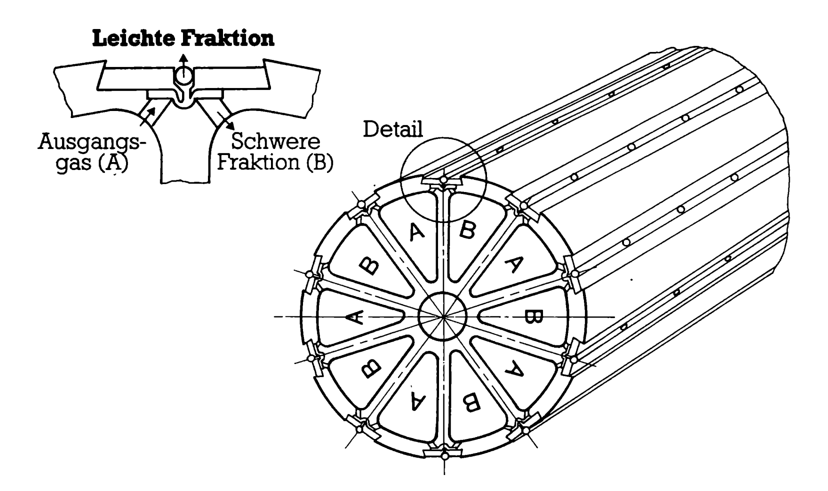



Abb. 13: Trennelement der Trenndüsen-Anreicherung.

Um einen hohen Trenneffekt zu erzielen, sind starke Zentrifugalkräfte erforderlich. Sie werden erreicht durch die Kombination von hoher Strömungsgeschwindigkeit und starker Umlenkung. Der Krümmungsradius der Umlenkrille — und damit des Gasstrahls — beträgt 0,1 mm. Hohe Strömungsgeschwindigkeiten werden durch „Verdünnen" des $UF_6$-Gases mit Wasserstoff möglich. Wasserstoffgas strömt mit Unterschallgeschwindigkeit durch die Düse und reißt das $UF_6$ mit. So erreicht das $UF_6$ das Mehrfache seiner Schallgeschwindigkeit in der Trenndüse, ohne daß die damit verbundenen Nachteile auftreten.

Für die technische Anwendung dieses Prozesses werden die Trenndüsen als meterlange Schlitze auf dem Umfang eines Rohres angeordnet, das im Inneren in eine Anzahl von Segmenten zur Zuführung des Ausgangsgases und zur Ableitung der Abfallströme unterteilt ist. Entsprechend geformte Aluminiumleisten, die in eine Nut eingelegt und durch Distanzstücke fixiert werden, bilden die langen schlitzförmigen Düsen und Abschälbleche. In die Segmente A wird das Ausgangsgas eingespeist. Es passiert die beiden Trenndüsen, die mit jeweils einem dieser Segmente verbunden sind. Der an U 235 angereicherte Produktstrom tritt in radialer Richtung aus dem Trennrohr aus. Die Abfallströme (schwere Fraktion) werden durch die Abschälbleche jeweils in die mit B bezeichneten Segmente geleitet (vgl. Abb. 13).

Mehrere solcher Trennrohre werden in einem Tank untergebracht, der zusammen mit dem Kompressor und einem Kühlaggregat eine Trennstufe einer Kaskade bildet.

## 3.2.2.4 Andere Anreicherungsverfahren

Neben diesen drei Verfahren, die bereits jetzt zur Urananreicherung im technischen Maßstab eingesetzt werden bzw. an der Schwelle des industriellen Einsatzes stehen, gibt es — wie einleitend bereits angedeutet — noch eine Reihe anderer Verfahren, die aber alle noch im Entwicklungsstadium sind.

In Südafrika wird von der Firma UCOR (Uranium Enrichment Corporation of South Africa Ltd.) ein Anreicherungsprozeß entwickelt, der als Helikon-Verfahren bezeichnet wird. Es handelt sich um einen gasdynamischen Prozeß, der — wie die Trenndüse — mit einem Verfahrensgas arbeitet, das neben $UF_6$ einen hohen Anteil von Wasserstoffgas besitzt. Obwohl über die Entwicklung dieses Prozesses berichtet wurde, sind Einzelheiten des Verfahrens bisher nicht bekanntgegeben worden. Prototyptrennstufen werden im Forschungszentrum Valindaba bei Pretoria betrieben. Das Verfahren soll zunächst eingesetzt werden, um den Eigenbedarf Südafrikas zu decken.

Die Isotopentrennung mit Hilfe von Lasern beruht darauf, daß sich bei U 235 und U 238 geringe Unterschiede in den Absorptionsspektren ergeben. Mit den Lasern stehen heute Lichtquellen zur Verfügung, die intensives Licht von eng begrenzter Wellenlänge abstrahlen. Mit der passenden

Wellenlänge ist es dann möglich, die eine Isotopenart anzuregen (d.h., sie dazu zu bringen, Energie aus dem Laserlicht aufzunehmen), während die andere nicht beeinflußt wird, da bei dieser die Wellenlänge des eingestrahlten Lichtes nicht „paßt".

Diese selektive Anregung wird zur Isotopentrennung ausgenutzt. Zwei Methoden werden untersucht: Die selektive Anregung von Urandampf, bei der das angeregte Uranisotop anschließend ionisiert und durch ein elektrisches Feld abgesaugt wird, und die selektive Anregung von $UF_6$-Molekülen, bei der das angeregte Molekül anschließend dissoziiert und in $UF_5$ übergeführt wird.

An der Entwicklung dieser Verfahren wird gearbeitet. Ein besonderer Anreiz ist der hohe Trenneffekt, der sich mit den Laserverfahren theoretisch erreichen läßt. Zur Zeit stehen jedoch einer industriellen Anwendung dieser Verfahren noch eine Reihe von Schwierigkeiten entgegen.

Die „chemische" Isotopentrennung beruht darauf, daß die Uranisotope bei gewissen chemischen Austauschreaktionen, z.B.

$$UX + Y \rightleftarrows UY + X$$

unterschiedlich starke Tendenzen zeigen, sich mit den Stoffen X und Y zu verbinden. Dadurch kann das Isotopenverhältnis U 235 : U 238 für die Verbindung UX anders sein als für UY.

Diese Tatsache kann man zur Isotopentrennung ausnutzen, wenn man geeignete Reaktionspartner X und Y findet.

Voraussetzungen für den erfolgenden Einsatz einer solchen chemischen Isotopentrennung ist ein hoher Trennfaktor, d.h. ein starker Unterschied der Isotopenverhältnisse für UX und UY. Außerdem müssen diese Isotopenverhältnisse sich schnell einstellen, und die Reaktionen von UX nach UY und zurück müssen sich leicht durchführen lassen.

In mehreren Ländern (Japan, USA, Australien, Frankreich) werden solche Austauschreaktionen intensiv auf ihre Eignung zur Uranisotopentrennung hin untersucht. Besondere Fortschritte sind aus Frankreich berichtet worden. Noch ist es jedoch zu früh, um Aussagen über die industrielle Verwendbarkeit dieser Methode zu machen.

Weiter wird an zwei Verfahren gearbeitet, bei denen die Isotopentrennung mit einem Uranplasma erreicht werden soll. Ein Plasma ist ein weitgehend ionisiertes Gas, das elektrischen Strom leitet. Es kann durch Magnetfelder zum Rotieren gebracht werden. Da eine solche „Plasmazentrifuge" keine festen rotierenden Teile enthält, können damit wesentlich höhere Drehgeschwindigkeiten und damit höhere Trenneffekte entstehen als mit den mechanischen Gaszentrifugen.

Das andere Plasmaverfahren beruht darauf, daß die Flugbahnen von Ionen, also auch der Uranionen, in Magnetfeldern von ihrer Masse abhängig sind. Dadurch wird eine räumliche Trennung der Isotope möglich.

## 3.2.3 Technisch-wirtschaftlicher Vergleich der Verfahren

Für den technischen Vergleich der Verfahren interessieren zunächst die Kennwerte der einzelnen Trennelemente (vgl. dazu Tab. 6). Der Trenneffekt $\varepsilon$ (vgl. Abschnitt 3.2.1) verbessert sich jeweils um etwa eine Größenordnung beim Übergang von der Diffusionstechnik über die Trenndüse zur Zentrifuge. Die Trennleistung der einzelnen Trennelemente nimmt dagegen in dieser Reihenfolge ab.

Tab. 6: Basisdaten der Anreicherungsverfahren

| | | Diffusion | Trenndüse | Zentrifuge |
|---|---|---|---|---|
| Einzelnes Trennelement | | | | |
| Trenneffekt | $\varepsilon$ | 0,002 (0,004 maximal) | 0,01—0,02 | 0,2—0,5 |
| Trennleistung | kg UTA/a | bis rd. 2 pro m² Membranfläche | rd. 30 pro Trennrohr | bis rd. 15 pro Zentrifuge |
| Energieverbrauch | kWh/kg UTA | 2300—2500 (z.Z. rd. 3000) | 3300 → 2500 | 250 → 100 |
| Trennkaskade | | | | |
| Stufenanzahl für Produktion von LWR-Brennstoff | | ca. 1200 | ca. 450 | 10—20 |
| Wirtschaftliche Anlagengröße | t UTA/a | 6000 bis 12000 | 2000—5000 | 1000 |

Diese Kennwerte bestimmen den Aufbau der Anreicherungsanlage: Die Größe des Trenneffekts $\varepsilon$ für das einzelne Trennelement legt die Mindestanzahl der Stufen in der Trennkaskade fest, die notwendig sind, um z.B. auf 3% angereichertes Uran produzieren zu können. Bei der Diffusionstechnik müssen dafür über 1000 Trennstufen hintereinander zu einer Kaskade zusammengeschaltet werden. Bei Verwenden der Trenndüsentechnik sind noch ca. 450 Trennstufen erforderlich, erst die Verwendung von Zentrifugen mit ihren hohen Werten für den Trenneffekt erlaubt es, mit etwa 10 bis 20 Trennstufen auszukommen.

Die Trennleistung des einzelnen Trennelements ist ein Maß für den technischen Aufwand, der beim Bau der Anreicherungsanlage getrieben werden muß. Um z.B. mit einer Anreicherungsanlage pro Jahr 1000 t auf 3% angereichertes Uran aus Natururan herzustellen (bei einem „Tails Assay" von 0,25%), muß diese Anlage eine Jahresleistung von 3810 t UTA/a erbringen. Wird diese Zahl durch die Trennleistung der einzelnen Trenn-

elemente dividiert, so wird deutlich, daß dafür eine Anreicherungsanlage der Zentrifugentechnik mit mindestens 250000 einzelnen Zentrifugen gebaut werden muß oder eine Anlage der Trenndüsentechnik mit mindestens 125000 Trennrohren oder eine Diffusionsanlage mit mindestens 1600000 $m^2$ wirksamer Membranfläche.

Die einzelnen Trennelemente müssen — wie oben dargestellt — entsprechend dem Wert für den Trenneffekt zu Trennstufen in einer Trennkaskade zusammengeschaltet werden. In der Zentrifugenanlage werden dabei tatsächlich eine große Anzahl einzelner Zentrifugen parallel eingesetzt, um die notwendige Trennleistung für eine Stufe in der Anreicherungskaskade zu erreichen. Bei der Diffusions- und Trenndüsentechnik werden ebenfalls Diffusionskammern bzw. Trennrohre parallel geschaltet. Durch Zusammenfassen vieler einzelner Trennelemente in einem Tank lassen sich die Trenneinheiten hier aber so groß bauen, daß eine Parallelschaltung dieser Einheiten im allgemeinen nicht erforderlich ist. So faßt z. B. die Trenndüsenversuchseinheit, die im Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelt und erprobt wurde, 81 Trennrohre mit je 10 Trenndüsen zu einer Einheit mit einer Trennleistung von 2 t UTA/a zusammen.

Für die Beurteilung der Wirtschaftlichkeit ist der Energieverbrauch zur Erzeugung einer Urantrennarbeitseinheit wichtig. Er ist bei den alten amerikanischen Diffusionsanlagen mit rund 3000 kWh/kg UTA recht hoch, für neue Diffusionsanlagen werden niedrigere Werte angegeben. Zentrifugen kommen dagegen mit 100—250 kWh/kg UTA aus. Der Energieverbrauch von Trenndüsen liegt gegenwärtig noch über dem der amerikanischen Diffusionsanlagen. Es ist jedoch möglich, ihn zu senken, da bei der Trenndüse — anders als bei der Diffusion — die Energieverluste theoretisch reduziert werden können, ohne die Trenneigenschaften zu beeinträchtigen.

Der Großteil der heute arbeitenden Urananreicherungsanlagen verwendet die Diffusionstechnik. Bereits in den 40er Jahren wurde die erste Großanlage in den USA gebaut. Die reichen Erfahrungen mit dieser Technik und die hohe Betriebssicherheit sind die Gründe dafür, daß die bestehenden amerikanischen Anlagen ausgebaut werden und daß auch in Europa neue Anlagen gebaut und geplant werden, die die Diffusionstechnik anwenden. Der geringe Trenneffekt der einzelnen Trennstufen macht — wie oben dargestellt — eine hohe Stufenzahl notwendig. Da zu jeder Trenneinheit (Diffusortank) ein Kompressor notwendig ist, werden die Einheiten für großen Durchsatz ausgelegt. Es zeigt sich, daß die wirtschaftlich günstige Anlagengröße bei 10000 t UTA/a liegt. Zur Zeit gibt es drei Diffusionsanreicherungsanlagen in USA, die im Verbund arbeiten. Eine weitere Anlage (Eurodif) ist in Tricastin, Frankreich, in Bau, eine andere (Coredif) ist geplant. Über die russischen Anreicherungsanlagen, die vermutlich ebenfalls nach der Diffusionstechnik arbeiten, liegen keine Angaben vor. Eine englische Anlage steht für kommerzielle Zwecke nicht zur Verfügung.

Der Zentrifugenprozeß vermeidet den wesentlichen Nachteil der Diffusionstechnik, verhältnismäßig viel Energie für die Kompressoren zu verbrauchen. Der hohe Trenneffekt der Zentrifugen vermindert außerdem drastisch die notwendige Anzahl von Trennstufen. Nachteil der Zentrifugentechnik ist die geringe Trennleistung der einzelnen Zentrifugen. Das

macht — wie oben erläutert — eine hohe Anzahl von Zentrifugen in einer Anlage und eine Parallelschaltung vieler Zentrifugen in einer Kaskadenstufe erforderlich. Andererseits kann darin auch ein Vorteil gesehen werden: Die Zentrifugenanlage mit nur 10—15 Trennstufen kann als Parallelanordnung mehrerer Kaskaden aufgebaut werden. Durch entsprechenden Zubau kann die Trennkapazität der Zentrifugenanlage stetig der Nachfrage angepaßt werden, was bei Diffusionsanlagen aufgrund ihrer anderen Bauweise nicht möglich ist. Die hohe Anzahl gleichartiger Zentrifugen ermöglicht eine standardisierte Massenfertigung für Erstausstattung, Ersatzbedarf und Erweiterung der Anlage.

In Europa arbeiten seit 1970 Großbritannien, die Niederlande und die Bundesrepublik Deutschland gemeinsam an der Entwicklung und Nutzung der Zentrifugentechnik. In Almelo (Niederlande) und Capenhurst (England) ist je eine Demonstrationsanlage von jeweils 200 t UTA/a gebaut worden. Mit dem Bau von je einer 1000-t-UTA/a-Anlage in Almelo und Capenhurst ist begonnen worden. Planung und Bau der Anlagen wird von der CENTEC durchgeführt, die Firma URENCO betreibt diese Anlagen. An beiden Firmen sind zu je einem Drittel englische, niederländische und deutsche Firmen beteiligt. Außerdem soll in der Bundesrepublik in Gronau eine weitere 1000-t-UTA/a-Zentrifugenanreicherungsanlage errichtet werden.

In USA wird für neue Anreicherungsanlagen nicht mehr die Diffusionstechnik, sondern ebenfalls die energiesparende Zentrifugentechnik eingesetzt werden. In Portsmouth, Ohio, ist eine Anlage mit 4×2200 t UTA/a geplant.

Auch in Japan wird an der Zentrifugentechnik gearbeitet. Zunächst wird dort eine Pilotanlage von 50 t UTA/a gebaut.

Das Trenndüsenverfahren wurde im Kernforschungszentrum Karlsruhe entwickelt. Seit 1970 beteiligte sich die STEAG AG Essen an der Übertragung dieses Verfahrens in die Technik.

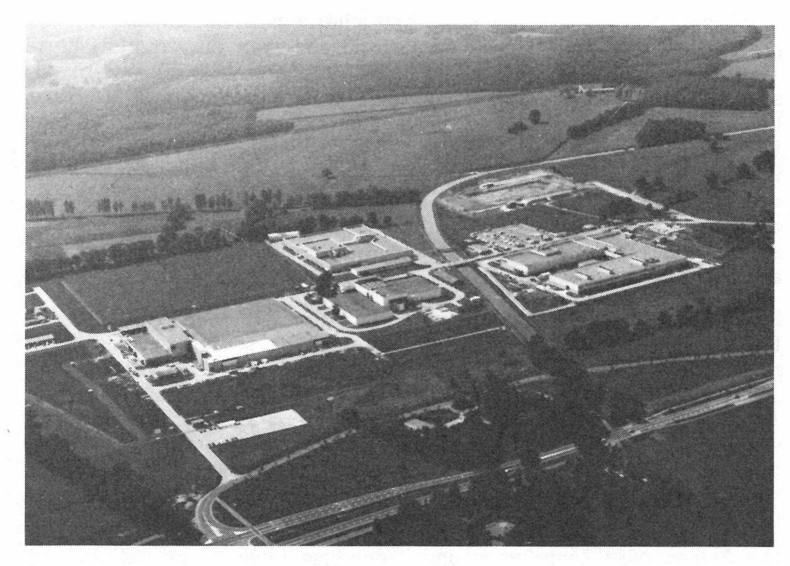
Im Rahmen der deutsch-brasilianischen Zusammenarbeit auf dem Kernenergiesektor wird eine Demonstrationsanlage in Brasilien gebaut.

## 3.2.4 Der Markt für Anreicherungsleistungen

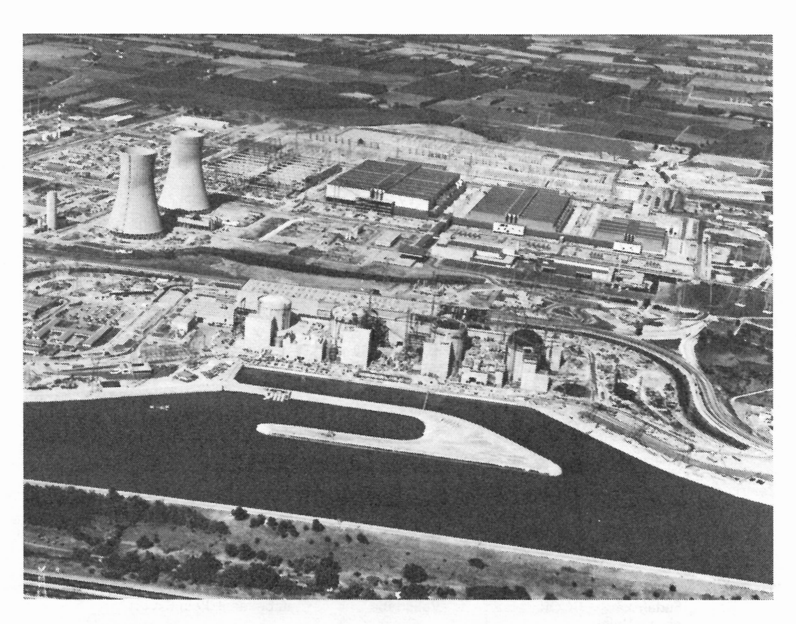
Lange Zeit hindurch hatte die frühere US Atomic Energy Commission[1]) (USAEC) praktisch ein Monopol auf dem Gebiet der Urananreicherung. Nur von ihr konnte angereichertes Uran bezogen werden.

Am 1. 1. 1969 wurde jedoch als erster Schritt zum Markt die Lohnanreicherung eingeführt. Der Kunde schließt einen privatrechtlichen Vertrag lediglich über die Anreicherungsleistung ab. Das dafür notwendige Uran in Form von $UF_6$, das hohen Reinheitsanforderungen („Spezifikationen") genügen muß, stellt der Kunde zur Verfügung. Er bezahlt die Anreicherungsleistung entsprechend der Anzahl der benötigten Trennarbeitseinheiten.

1) heute: Department of Energy (DOE)



*Deutsch-niederländische Urananreicherungsanlage in Almelo*
Foto: Uranit/C. Severin



Französische Urananreicherungsanlage in Tricastin Foto: EdF

Inzwischen bieten mehrere Firmen Anreicherungsdienste an, aber immer noch haben die amerikanischen Diffusionsanlagen eine marktbeherrschende Stellung. Deswegen kommt den Gebühren, die das amerikanische Department of Energy (DOE) für die Anreicherung festsetzt, eine besondere Bedeutung zu. In den 60er Jahren lagen sie bei etwa 30 $/kg UTA. Sie stiegen über die Jahre an. Ab Januar 1980 verlangt das DOE rund 98 bis 99 $/kg UTA. Das DOE legt auch offen, wie sich diese Preise ergeben. Daher ist bekannt, daß die Energiekosten jetzt mit rund 45% den höchsten Einzelbetrag zu den Gesamtkosten ausmachen. Die Preise der anderen Anreicherungsfirmen werden nicht so offengelegt, richten sich aber nach den DOE-Preisen.

Eine Übersicht der Anreicherungsanlagen gibt Tab. 7. Sie zeigt, daß die Diffusionsanlagen in USA z.Z das Rückgrat der Versorgung mit Anreicherung bilden. Durch ein „Cascade Improvement Program (CIP)" und ein „Cascade Upgrading Program (CUP)" soll die Leistungsfähigkeit dieser Anlagen weiter gesteigert werden. Die kleineren französischen und englischen Diffusionsanlagen nehmen keine privaten Aufträge an. Es ist bekannt, daß es mindestens je eine größere Diffusionsanlage in der UdSSR und in der Volksrepublik China gibt. Alle Angaben über Standort und Kapazität dieser Anlagen sind jedoch nur Vermutungen.

Die Anlagen der Zentrifugen- und Trenndüsentechnik sind z.Z. (bis auf kleinere Demonstrationsanlagen) sämtlich noch im Bau bzw. in der Planung. Diese Techniken werden erst in der Zukunft zur Versorgung beitragen können.

Tab. 7: Anreicherungsanlagen der Welt

| Technologie | Land | Betreiber | Anlagenstandorte | Anreicherungskapazität in 1000 t UTA | | |
|---|---|---|---|---|---|---|
| | | | | 1980 | 1985 | 1990 |
| Diffusion | USA | US Dept. of Energy | Oak Ridge, Tenn.<br>Paducah, Ky.<br>Portsmouth, Ohio | 20 | 25,5 | 25,5 |
| | F | Eurodif | Tricastin | 6 | 10,8 | 10,8 |
| | | Coredif | noch nicht festgelegt | — | — | 10 |
| | UdSSR | Techsnabexport (Exportanteil in westliche Welt) | nicht angegeben | 3 | 3 | 3 |
| | China | unbekannt | unbekannt | unbekannt, kein Export | | |
| Zentrifuge | USA | US Dept. of Energy | Piketon, Ohio | — | — | 4 |
| | UK, NL, D | URENCO | Almelo (NL)<br>Capenhurst (UK) | 0,5 | 2,5 | 7,5 |
| | Japan | PNC | Ningyo Pass (West Honshu) | — | 0,5 | 2,5 |
| Trenndüse | Brasilien | NUCLEI | Resende | — | 0,2 | 0,2 |
| | Südafrikanische Union | UCOR | Valindaba | unbekannt, kein Export | | |

Der Anreicherungsmarkt zeigt derzeit einen Angebotsüberschuß, der voraussichtlich bis Ende der 80er Jahre andauern wird. Im Jahr 1979 standen in Westeuropa einem tatsächlichen Bedarf von rund 7000 t UTA vertraglich vereinbarte Lieferungen von rund 9000 t UTA (4000 t durch DOE, 3000 t aus der UdSSR und weitere 2000 t durch Eurodif) gegenüber. Hochrechnungen zeigen, daß schon Anfang der 80er Jahre die europäischen Firmen Eurodif und Urenco über 50% des westeuropäischen Anreicherungsbedarfs werden decken können. Für die Bundesrepublik Deutschland im besonderen ergibt sich, daß der Bedarf an Anreicherung bis 1982 durch Verträge zwischen den Energieversorgungsunternehmen (EVU) und den Anreicherungsfirmen voll gedeckt ist. Darüber hinaus sind Lieferverträge abgeschlossen worden, die bis 1990 reichen. Für die deutschen EVU kommt der Fortführung des Ausbaus der Zentrifugenanlagen besondere Bedeutung zu. Mit dieser Technik ist es möglich, nahe beim Verbraucher, dem Bedarf angepaßt, die erforderliche Anreicherungskapazität zu errichten, ohne daß dadurch ein neuer größerer Energiebedarf verursacht wird.

Zusammenfassend ist festzustellen, daß weder jetzt noch in der Zukunft bei der Anreicherung Versorgungsschwierigkeiten oder einseitige Abhängigkeiten zu befürchten sind.

Literatur zu Kapitel 3


[1] J. Massone: Die industrielle Herstellung von Uranhexafluorid
Schriftenreihe des Deutschen Atomforums, Heft 20, 1974 (vergriffen)

[2] E. W. Becker: Die Technik der Urananreicherung
Atomwirtschaft (21) 1976, S. 402—407

[3] St. Villani: Isotope Separation
American Nuclear Society 1976

[4] W. Ehrfeld, U. Ehrfeld: Uranisotopentrennung
In: C. Keller, H. Möllinger (Hrsg.): Kernbrennstoffkreislauf, Bd. 1, Heidelberg: Hüthig-Verl. 1978, S. 131—161

[5] H. Mohrhauer: Urananreicherungstechnik
In: Die Versorgung Europas mit Kernbrennstoffen, Herausgeber: Schweizerische Vereinigung für Atomenergie, Bern, 1979

[6] International Fuel Cycle Evaluation, Enrichment Availability
Report of INFCE-Working Group 2, Wien 1980

# 4. Brennelementherstellung

Als Brennelementherstellung werden zusammenfassend alle Arbeitsgänge bezeichnet, die vom Brennstoff Uran, Plutonium und gegebenenfalls Thorium zum fertigen Brennelement führen, das in den Reaktor des Kernkraftwerks eingesetzt wird.

Im weiteren Sinne gehören neben dem eigentlichen Fertigungsprozeß auch die Brennelementauslegung und eine Reihe von Serviceleistungen zum Brennelementeinsatz im Reaktor zum Bereich der Brennelementherstellung.

## 4.1 Brennelementauslegung

Die Gesichtspunkte für die Auslegung der Brennelemente ergeben sich aus den Anforderungen, die an die Brennelemente während ihres Einsatzes im Reaktor gestellt werden. Aufgabe der Brennelemente ist die Energieerzeugung. Sie erfolgt durch den Ablauf von Kernspaltungen, die durch Neutronen ausgelöst werden.

Die Brennelemente müssen so ausgelegt werden, daß sie den Ablauf der Kernspaltungen und deren Steuerung nicht behindern, d.h., gewisse neutronen-physikalische Anforderungen müssen erfüllt sein.

Die im Brennstoff erzeugte Wärmeenergie muß zur weiteren Nutzung an das Kühlmittel abgegeben werden, ohne daß sich unzulässig hohe Temperaturwerte im Brennstoff ergeben, durch die die Brennelemente beschädigt werden könnten.

Die mit der Kernspaltung entstehenden radioaktiven Spaltprodukte müssen sicher im Brennelement zurückgehalten werden. Sie dürfen nicht in das Kühlmittel übergehen und mit ihm das Reaktorgefäß verlassen.

Vorbedingung zur Erfüllung dieser Anforderungen ist schließlich eine ausreichende mechanische Stabilität der Brennelemente. Die Brennelemente werden über drei bis vier Jahre hinweg hohen Drücken und Temperaturen sowie intensiven Neutronenflüssen ausgesetzt. Sie werden mehrfach im Reaktor umgesetzt und dabei mechanisch beansprucht und sollen dennoch über die ganze Einsatzzeit hinweg und bei nachfolgenden Transporten absolut gasdicht bleiben, nicht korrodieren, sich nicht verformen oder beschädigt werden.

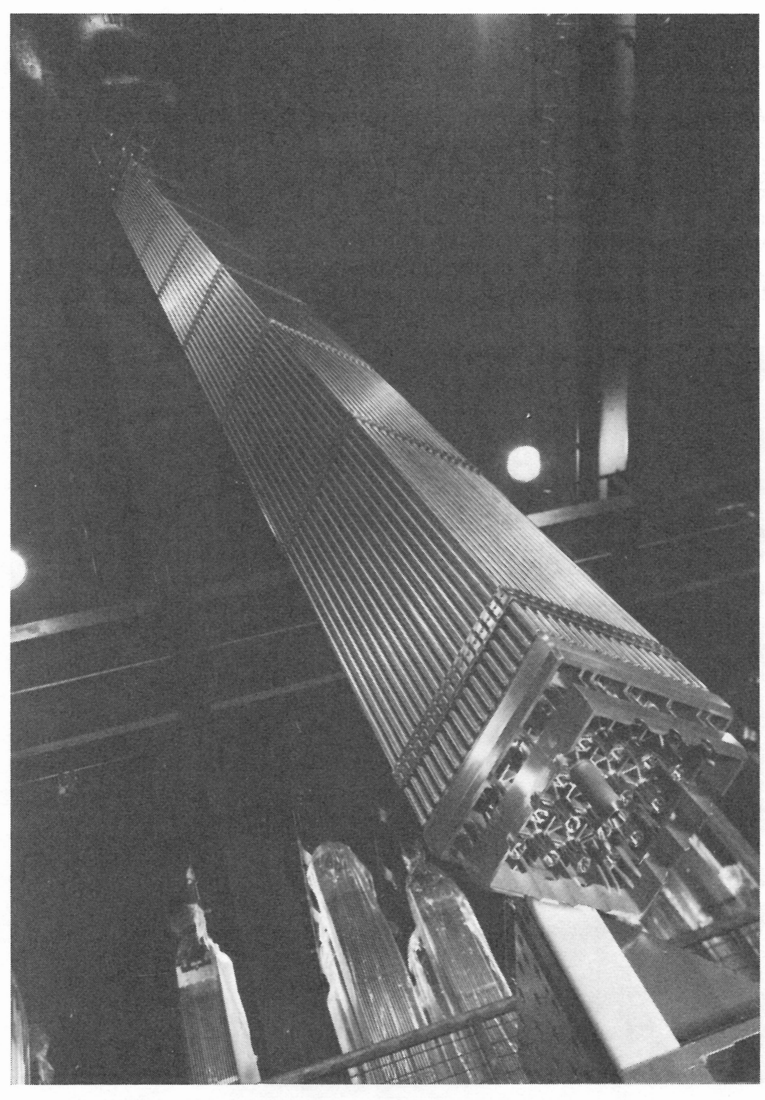
Die Gesamtheit dieser Anforderungen hat zu den heute gebräuchlichen Bauweisen der Brennelemente geführt.

## 4.2 Brennelemente für Leichtwasserreaktoren (LWR)

### 4.2.1 Konstruktiver Aufbau der LWR-Brennelemente

Die Brennelemente der Leichtwasserreaktoren sind Stabbündel. Die Brennstäbe, zylindrische Rohre aus Zirkonlegierungen, die den Brennstoff (Urandioxid) in Form von gesinterten Tabletten umschließen, werden

durch gitterartige Abstandshalter in quadratischer Anordnung zusammengehalten. Kopf- und Fußstücke geben zusätzliche mechanische Stabilität und erlauben das Handhaben der Brennelemente und ihre Fixierung im Reaktorkern.

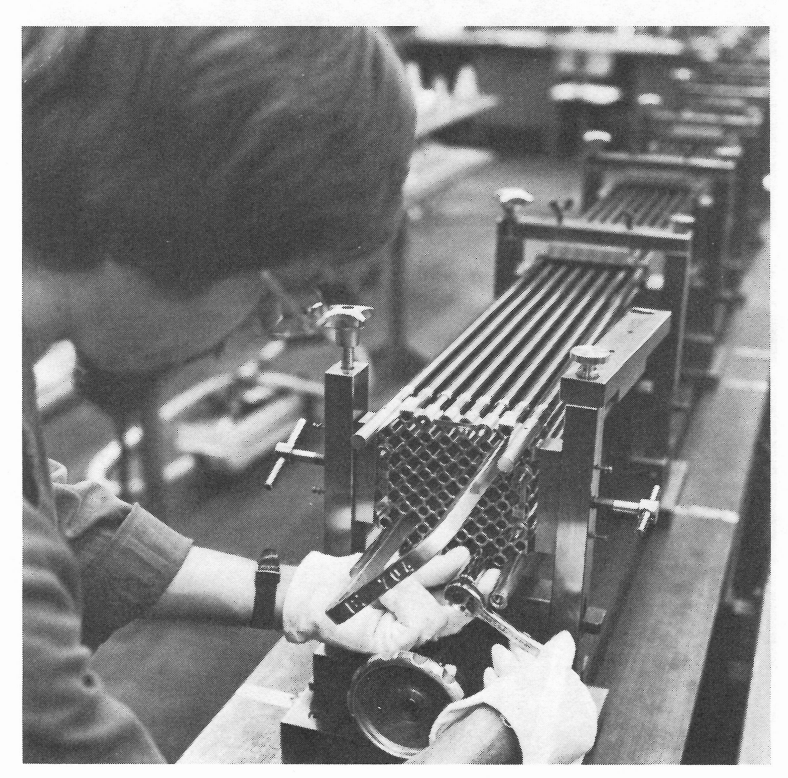


*Druckwasserreaktor-Brennelement* Foto: BBR

Soweit gleichen sich die Brennelemente aller Leichtwasserreaktoren. Geht man jedoch mehr in die Einzelheiten, so zeigen sich Konstruktionsunterschiede je nach dem Reaktortyp.

Beim Brennelement des Druckwasserreaktors (DWR) enthält das Stabbündel neben den Brennstäben mehrere Steuerstabführungsrohre. Letztere sind mit den Abstandshaltern verschweißt und bilden mit diesen ein formstabiles Skelett, mit dem die Kopf- und Fußstücke des Brennelements verschraubt werden. In dieses Skelett werden die einzelnen Brennstäbe eingeschoben. Die Abstandshalter halten sie federnd in ihrer Position, axial sind die Stäbe frei beweglich, um thermische Ausdehungen zu erlauben.

Als Beispiel sei hier der Aufbau der Brennelemente des KKW Biblis beschrieben. Auf den insgesamt 16x16 = 256 Gitterpositionen sind 236 Brennstäbe und 20 Steuerstabführungsrohre angeordnet. Die Führungsrohre nehmen die Steuerstäbe auf, zylindrische Stäbe aus einer Stahllegierung, die neutronenabsorbierende Stoffe enthalten. Diese Steuerstäbe werden oberhalb des Brennelements von einem Verbindungsstück, der „Spinne“, zusammengehalten und können so zum Steuern der Kettenreaktion gemeinsam in den Führungsrohren axial bewegt werden.



*Siedewasserreaktor-Brennelement* Foto: RBU

Der Reaktorkern des Siedewasserreaktors ist aufgeteilt in Siedebereiche ohne Steuerelemente und praktisch dampffreie Regelbereiche, da die Steuerstäbe den Siedevorgang im Brennelement stören. Die Abgrenzung dieser Bereiche gegeneinander bilden perforierte Kästen aus einer Zirkonlegierung (Zircaloy), die die dampferzeugenden Brennstabbündel umschließen. Die Kästen sind mit dem Fußstück der Brennelemente verbunden. Die Abstandshalter werden durch einen zentralen brennstofffreien Stab auf ihren axialen Positionen fixiert und liegen federnd der Kastenwand an. Die an den Stirnseiten offenen Kästen tragen zur Formstabilität der Brennelemente bei, führen das Kühlmittel, vermeiden Querströmungen von einem Brennelement zu den Nachbarelementen und halten den im Brennelement erzeugten Dampf von den Regelungsbereichen fern. Je vier Brennelemente umgeben jeweils einen Regelungsbereich, in dem ein Steuerelement mit kreuzförmigem Querschnitt von unten axial bewegt werden kann.

Ein typisches SWR-Brennelement (z.B. vom KKW Gundremmingen II) enthält 8x8 = 64 Gitterpositionen, auf denen 63 Brennstäbe und der sog. „Wasserstab", der die Abstandshalter trägt, untergebracht sind. Die konstruktiven Unterschiede zwischen DWR- und SWR-Brennelementen, die durch die unterschiedliche Art der Kühlung (ohne bzw. mit Sieden) bedingt sind, wirken sich weiter auf den Brennstoff und auf die Wahl des Strukturmaterials aus. Der homogene Aufbau des DWR-Kerns erlaubt es, alle Brennstäbe eines DWR-Brennelements mit Brennstoff gleicher Anreicherung zu beschicken.

Im Kern des Siedewasserreaktors dagegen stören die Wasserspalte der Regelungsbereiche den regelmäßigen Kernaufbau; deswegen müssen hier zur Vermeidung von Leistungsspitzen die Brennstäbe eines Brennelements mit Brennstoff unterschiedlicher Anreicherung (gewöhnlich mit drei verschiedenen Anreicherungsgraden) beschickt werden.

Der Brennelementkasten, der die SWR-Brennelemente im Reaktorkern umschließt, gewährt so hohe Formstabilität, daß die Abstandshalter der SWR-Brennelemente aus Zircaloy gefertigt werden können. Diese Zirkonlegierung absorbiert weniger Neutronen als die Stahl-Nickel-Legierungen der DWR-Abstandshalter, ist aber hinsichtlich ihrer mechanischen Eigenschaften jenen unterlegen.

### 4.2.2 Typische Kennzahlen für Stabbündelbrennelemente

Einige Kenndaten für Stabbündelbrennelemente für Leichtwasserreaktoren vom Druckwasser- und Siedewassertyp sowie für schnelle Brutreaktoren sind in Tabelle 8 zusammengestellt. Um die notwendige Neutronenabbremsung im Moderator zu ermöglichen, sind die Brennstäbe in den Brennelementen der thermischen Reaktoren (DWR und SWR) in einer quadratischen Anordnung nicht so eng zusammengestellt wie die Brennstäbe im schnellen Reaktor.

Die aktive Länge der Brennelemente ist die Länge der Brennstoffsäule im Brennstab. Sie beträgt 390 cm beim DWR Typ Biblis und 376 cm beim SWR

Typ Gundremmingen. Beim schnellen Brutreaktor macht die aktive Länge nur 95cm aus, darüber und darunter sind im Brennstab je 40cm lange Brutstofftablettensäulen angeordnet, die den oberen und unteren axialen Brutmantel bilden. Die Gesamtlänge der Brennelemente ergibt sich aus Konstruktionsgründen.

Die Wahl des Hüllmaterials, Zirkonium-Legierungen (Zircaloy) oder Edelstahl, richtet sich nach der geforderten Korrosionsbeständigkeit und mechanischen Stabilität. Hauptunterschied zwischen den Zirkonlegierungen Zry-2 und Zry-4 ist der Nickelgehalt der ersteren, der eine höhere Widerstandsfähigkeit gegen Dampf ergibt.

Die maximale Stableistung, d.h. die Wärmeentwicklung pro Längeneinheit, ist durch die maximal zulässige Temperaturspitze im Brennstoff begrenzt. Sie ist weitgehend unabhängig vom Brennstabdurchmesser und unabhängig von der Art der Kühlung. Grund dafür ist, daß die Stableistung praktisch allein von der Wärmeleitfähigkeit des Brennstoffmaterials ($UO_2$ für alle hier behandelten Reaktortypen) und nur schwach von der Temperatur am Außenrand der Brennstofftabletten abhängt. Erst mit der Verwendung von Urankarbid als Brennstoff, wie das für Brutreaktoren erwogen wird, könnte eine Erhöhung der Werte für die maximale Stableistung möglich werden. Bei der Auslegung der Brennelemente werden technologisch konservative Werte für die mittlere Stableistung gewählt.

Der Abbrand wird zumeist durch die vom Kernbrennstoff abgegebene Wärmeenergie beschrieben. Als Maß dafür dient die Wärmefreisetzung in Megawattagen pro Tonne Uran (MWd/t U). Der Abbrand hat eine tech-

Tabelle 8:
Zusammenstellung von Kenndaten für Stabbündelbrennelemente

| | | | DWR | SWR | SBR |
|---|---|---|---|---|---|
| | | | Biblis | Gund remmingen KRB-2 | Kalkar SNR-300 |
| Brennelementform | Prismatische Säulen mit | | quadratischem Querschnitt | quadratischem Querschnitt | sechseckigem Querschnitt |
| Gesamtlänge | | mm | 4905 | 4470 | 3700 |
| Querschnitt bzw. Schlüsselweite | | mm | 230x230 | 140x140 | 104,5 |
| Brennstoff | | | $UO_2$ | $UO_2$ | $PuO_2 - UO_2$ |
| Anreicherung (der Nachladungen) | | Gew.-% | 3,0 | 2,75 | 30% Pu |
| Aktive Länge | | mm | 3900 | 3760 | 950 |
| Anzahl der Brennstäbe | | | 236 | 63 | 166 |
| Brennstabdurchmesser | | mm | 10,75 | 12,5 | 6 bzw. 7,6 |
| Hüllrohrmaterial | | | Zry-4 | Zry-4 | Stahl WS-Nr. 1.4970 |
| Hüllrohrwanddicke | | mm | 0,725 | 0,85 | 0,35 |
| Stableistung (im Mittel) | | W/cm | 206 | 198 | 300 |
| Entladeabbrand (im Mittel) | | MWd/tU | 30000 | 27500 | 57000 |

nologisch bedingte Obergrenze durch das Verhalten des Brennstoffes im Reaktor. Der im praktischen Betrieb erreichte mittlere Entladeabbrand ist geringer. Er ist eine wichtige betriebswirtschaftliche Kenngröße.

### 4.2.3 Die Fertigung von LWR-Brennelementen

Ausgangsmaterial für die Brennelementfertigung ist angereichertes Uranhexafluorid ($UF_6$). Es wird in Stahlzylindern aus der Anreicherungsanlage

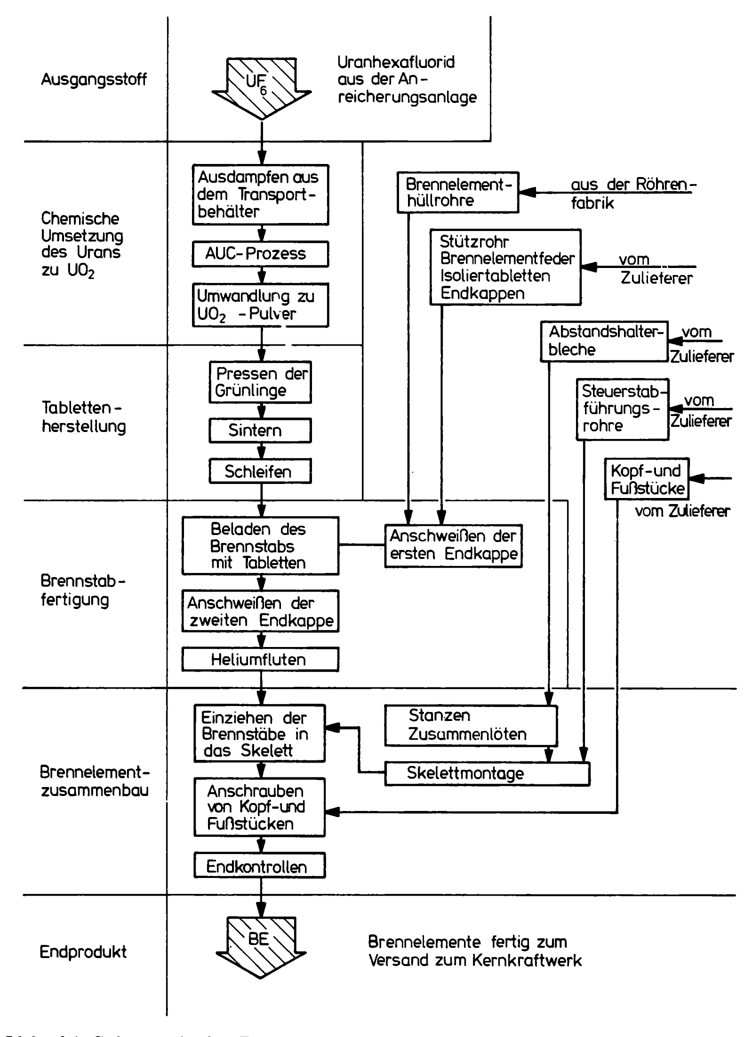



Abb. 14: Schematische Darstellung der Fertigung von Brennelementen

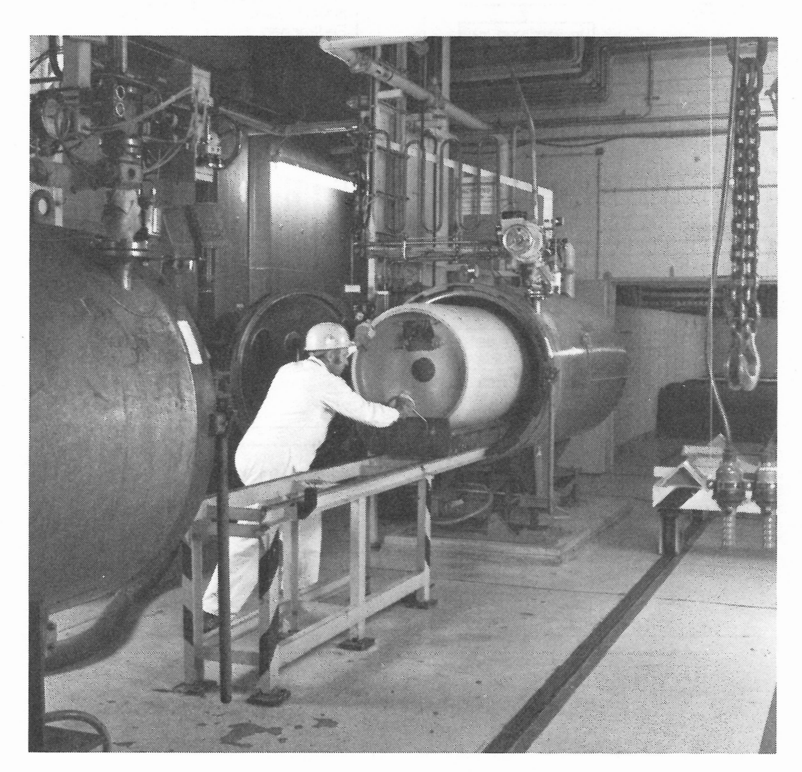
angeliefert und muß zunächst chemisch zu Urandioxid ($UO_2$) umgewandelt werden. Dafür wird in Deutschland das naßchemische AUC-Verfahren angewendet.

Durch Aufheizen auf rund 100° C geht das $UF_6$ im Lieferbehälter in den Gaszustand über und gelangt so in einen Reaktionsbehälter, in dem es sich mit Wasser, Kohlendioxid und Ammoniak zu Ammonium-Uranyl-Carbonat (AUC) umwandelt.

$$UF_6 + 2H_2O \rightarrow UO_2F_2 + 4HF$$

$$UO_2F_2 + 6NH_3 + 3CO_2 + 3H_2O \rightarrow (NH_4)_4[UO_2(CO_2)_3] + 2NH_4F$$

Das gelbe AUC fällt aus der wäßrigen Suspension aus, wird durch Filtrieren auf einem Drehtellerfilter abgetrennt, in einem Wirbelbettofen thermisch zu Urantrioxid zersetzt und dann in Wasserstoffatmosphäre bei 550° C zu $UO_2$ reduziert.

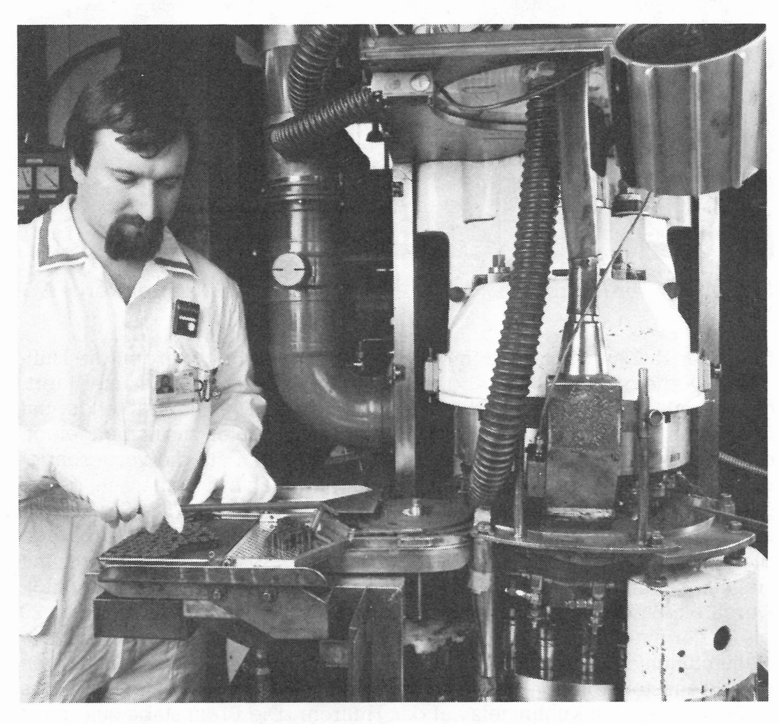


*Ausdampfanlage* Foto: KWU

Das $UO_2$-Pulver wird in Drehmischern zu Losen von rd. 2t homogenisiert. Ein Vorteil des AUC-Verfahrens ist die gute Rieselfähigkeit des $UO_2$-Pulvers. Es kann ohne jede weitere Zwischenbehandlung (Granulieren, Vorkompaktieren, Brechen, Sieben) und ohne Hilfsmittelzusätze direkt zu Tabletten gepreßt werden. Diese „Grünlinge" werden in Wasserstoffatmosphäre bei Temperaturen über 1700° C gesintert. Durch das zwei bis drei Stunden dauernde Sintern erhalten die $UO_2$-Tabletten die erforderliche Dichte und Festigkeit. Die geforderten Durchmessertoleranzen der Tabletten von $\pm$ 10 bis $\pm$ 25$\mu$m werden durch anschließendes Schleifen auf spitzenlosen Rundschleifmaschinen erreicht.

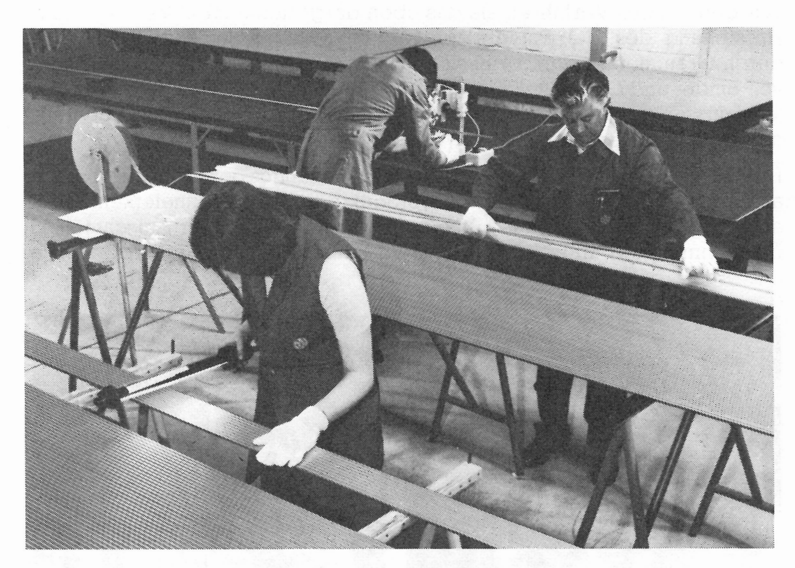
Werden andere Verfahren als das oben dargestellte AUC-Verfahren zur Herstellung des $UO_2$-Pulvers verwendet, so muß das mehlige Pulver durch Granulierverfahren rieselfähig gemacht werden und durch Zusatz von Binde- und Gleitmittel zum Pressen vorbereitet werden. Vor dem Sintern müssen diese Zusätze durch eine Temperaturbehandlung wieder ausgetrieben werden.

Die für die Brennstabfertigung verwendeten, nahtlos gezogenen Hüllrohre aus Zircaloy werden als Halbfertigprodukte bei der Brennelementfabrik angeliefert. Ihre Herstellung beginnt mit dem zweifachen Aufschmelzen des Rohmaterials im Lichtbogenofen und dem Schmieden von Bolzen, die



*Pressen von Brennstofftabletten* Foto: KWU

abgedreht und aufgebohrt werden. Durch sorgfältige Kontrollen wird sichergestellt, daß nur Stäbe der richtigen Zusammensetzung (spezifikationsgerechte Legierung, geringe Verunreinigungen) und einwandfreier Oberflächengüte durch Warmpressen bei 700° C zu rohrförmigen Rohlingen weiterverarbeitet werden. Aus diesen werden durch Kaltverformung (Pilgerwalzverfahren) und Zwischenglühen in mehreren Schritten die dünnwandigen langen Hüllrohre hergestellt. Durch die Verformungen, Wärmebehandlungen und eine abschließende Oberflächenbehandlung erhalten die Rohre die gewünschten mechanischen und korrosionsresistenten Eigenschaften.

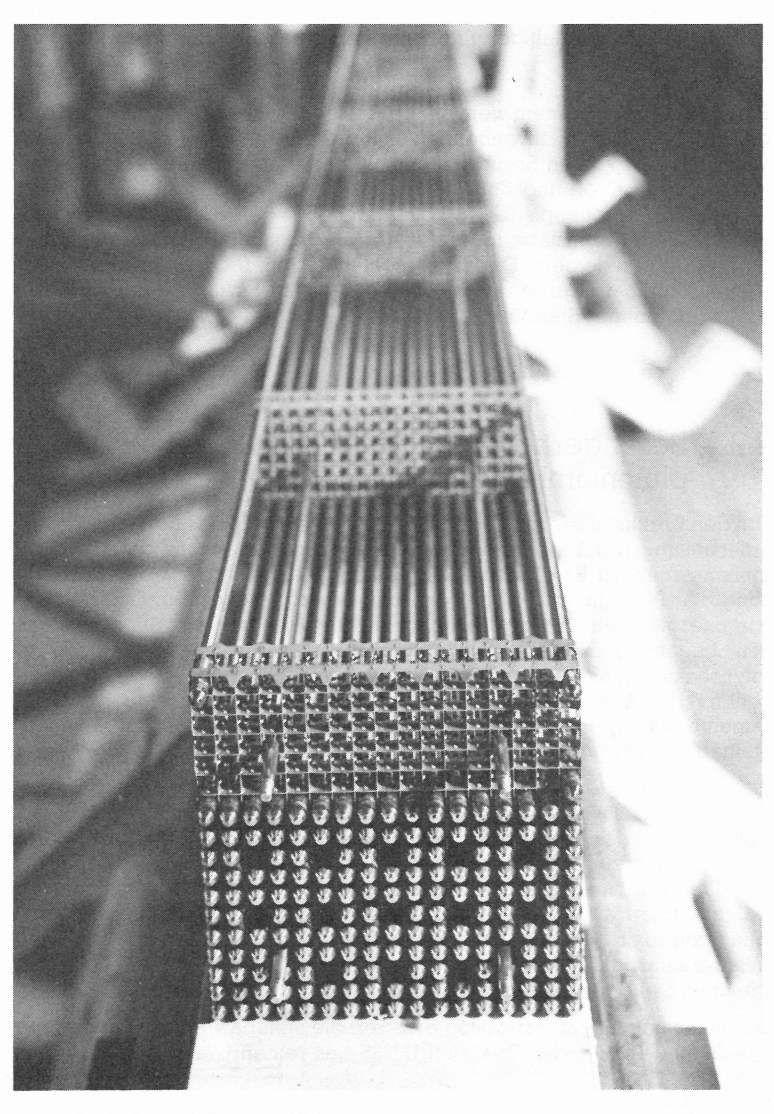


*Endrevision von Hüllrohren* Foto: Mannesmann-Röhrenwerke AG

Nach der Eingangskontrolle in der Brennelementfabrik werden die Hüllrohre auf die genaue Länge abgeschnitten und an einem Ende unter Inertgasatmosphäre mit einer Endkappe verschweißt. Die $UO_2$-Tabletten, mit denen das Rohr beladen werden soll, werden zu Säulen zusammengelegt, die mit besonders hergestellten Ausgleichstabletten auf die vorgeschriebene Länge gebracht werden. Die Tablettensäule wird gemessen, gewogen, getrocknet und im Vakuum in das Hüllrohr eingefüllt. Die Strukturteile, eine Spiralfeder zum Zusammenhalten der Tablettensäule, Isoliertabletten, Distanzrohr etc. werden eingesetzt, der Brennstab wird mit Helium geflutet, der zweite Endstopfen aufgedrückt und verschweißt. Durch ein Stirnloch im Endstopfen wird ein Heliumvorinnendruck von 20 bis 30 bar aufgebracht, anschließend wird das Stirnloch verschweißt. Die Heliumfüllung des Brennstabes verbessert die Wärmeübertragung von den Brennstofftabletten zum Hüllrohr und kompensiert einen Teil des Außendrucks des Kühlmittels auf das Hüllrohr. Die Brennstäbe sind nicht vollständig mit Brennstofftabletten gefüllt. Das Distanzrohr hält einen Teil

des Innenvolumens zur Aufnahme von Spaltgasen frei. Dieser Raum für die Spaltgase ist so bemessen, daß der gesamte Innendruck aufgrund der Heliumfüllung und der Spaltgase immer unterhalb des Kühlmitteldrucks von außen bleibt.

Mit einer abschließenden Röntgenüberprüfung der Schweißnähte und einem Lecktest wird die Brennstabfertigung abgeschlossen.



*Abstandshalter mit Brennstäben* Foto: CEA/Jahan

Der Zusammenbau der Brennstäbe zum DWR-Brennelement beginnt mit dem Zusammenbau des sog. „Skeletts" aus den Steuerstabführungsrohren und den Abstandshaltern. Die Abstandshalter werden aus präzisionsgestanzten Nickelblechstreifen[1]) zusammengesteckt, die durch Löten miteinander verbunden werden. Die fertigen Abstandshalter werden dann mit den Steuerstabführungsrohren verschweißt. In dieses mechanisch stabile Traggerüst werden die Brennstäbe eingezogen, deren Oberfläche dabei durch einen Lacküberzug geschützt ist. Nach Anbringen der Kopf- und Fußstücke und sorgfältiger Endkontrolle ist das Brennelement jetzt versandfertig.

Beim SWR-Brennelement werden die Abstandshalter aus Zircaloyblechen gefertigt, die durch Schweißen miteinander verbunden werden. Der zentrale Stab, der keinen Brennstoff enthält, bildet hier mit den Abstandshaltern und den Kopf- und Fußstücken das Traggerüst für die Brennstäbe. Durch die Neutronenphysik und die andere Art der Kühlung bedingt, stehen die SWR-Brennstäbe im größeren Abstand zueinander als die Stäbe im DWR-Brennelement. Die Brennelementkästen, die das Brennstabbündel umschließen, werden üblicherweise erst am Einsatzort, d.h. im Kernkraftwerk, auf das Stabbündel montiert.

## 4.2.4 Besonderheiten bei der Fertigung von plutoniumhaltigen Brennelementen

Um den Brennstoffkreislauf schließen zu können, muß das bei der Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente rückgewonnene Uran und Plutonium erneut zu Brennelementen verarbeitet werden. Mit der Rückführung des Plutoniums, d.h. der Nutzung der rückgewonnenen Spaltstoffe zur Energieerzeugung im Kernkraftwerk, wurde in Deutschland bereits 1966 begonnen. Die ersten plutoniumhaltigen Brennstäbe sind in den Prototypreaktor Kahl eingesetzt worden. Bis Mitte 1979 wurden von der deutschen Firma ALKEM, die sich mit der Fertigung plutoniumhaltiger Brennelemente befaßt, rund 1,2 t Plutonium zu über 23 t plutoniumhaltiger Brennstofftabletten verarbeitet.

Der Fertigungsverlauf für Brennelemente mit plutoniumhaltigem Brennstoff ist grundsätzlich derselbe wie für Uran-Brennelemente. Das Plutonium fällt bei der Wiederaufarbeitung als Nitratlösung an. In dieser Form wird es auch zur Brennelementfabrik angeliefert. In Zukunft könnte für den Transport aus Sicherheitsgründen eine feste Form (z.B. Plutoniumoxidpulver) gefordert werden. Nach dem Konzept des integrierten Entsorgungszentrums würden Plutoniumtransporte überhaupt entfallen, weil Wiederaufarbeitung und Fertigung plutoniumhaltiger Brennelemente am gleichen Standort stattfinden (vgl. Kapitel 6).

Im plutoniumhaltigen Brennstoff ersetzen die spaltbaren Plutoniumisotope Pu 239 und Pu 241 den Spaltstoff U 235 des reinen Uranbrennstoffs. Das

1) Inconel

Plutonium muß also im plutoniumhaltigen Brennstoff mit dem Brennstoff Uran möglichst genauso homogen vermischt sein wie die Uranisotope U 235 und U 238 im Uranbrennstoff.

Zur Herstellung des Uran-Plutonium-Mischbrennstoffes gibt es zwei Möglichkeiten:

1. mechanisches Vermengen von $UO_2$- und $PuO_2$-Pulvern
2. gemeinsames Ausfällen (Kopräzipitation) von Uran und Plutonium aus Lösungen und anschließendes Umwandeln zum Oxid.

Für die Kopräzipitation müssen aber während des gesamten Prozesses die Fällbedingungen sehr exakt eingehalten werden, weil sich sonst Inhomogenitäten des Produkts einstellen. Wegen dieser Schwierigkeit bevorzugt man heute die mechanische Vermengung.

Das $UO_2$ wird nach dem bereits beschriebenen AUC-Verfahren hergestellt, wobei auch Uranylnitrat als Ausgangsmaterial dienen kann.

$$UO_2(NO_3)_2 + 6NH_3 + 3CO + 3H_2O \rightarrow (NH_4)_4|UO_2(CO_3)_3| + 2NH_2NO_3$$

Das aus der Wiederaufarbeitung stammende Plutoniumnitrat $Pu(NO_3)_4$ wird mit Oxalsäure als Plutonium(IV)oxalat ausgefällt, das anschließend bei über 300° C zu Plutoniumdioxid kalziniert wird.

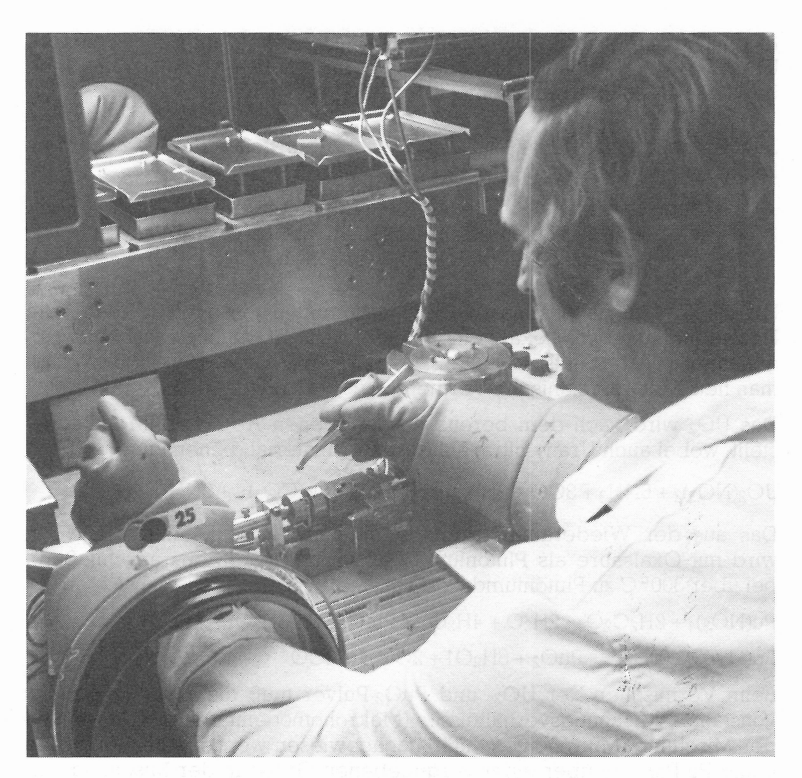
$$Pu(NO_3)_4 + 2H_2C_2O_4 \,.\, 2H_2O + 4H_2O \rightarrow Pu(C_2O_4) \,.\, 6H_2O + 4HNO_3$$

$$Pu(C_2O_4) \,.\, 6H_2O \rightarrow PuO_2 + 6H_2O\uparrow + 2CO_2\uparrow + 2CO\uparrow$$

Beim Vermischen der $UO_2$- und $PuO_2$-Pulver muß die Einhaltung eines konstanten Mischungsverhältnisses (Makrohomogenität) und der Feinheit der Mischung (Mikrohomogenität) nachgewiesen werden, d.h., es dürfen keine Pu-Partikel über einer vorgegebenen Größe in der Mischung vorkommen.

Die Pulvermischung, gewöhnlich mit einem Spaltstoffgehalt von 2—4%, wird zu Tabletten gepreßt, die nach Sintern und Schleifen in die Hüllrohre gefüllt werden.

Plutonium und seine Verbindungen sind aufgrund ihrer Radiotoxizität bereits in geringen Mengen gesundheitsschädlich, wenn sie in den Körper gelangen („inkorporiert" werden). Aus diesem Grund dürfen plutoniumhaltige Brennstoffe nur innerhalb luftdicht abgeschlossener Systeme verarbeitet werden. Die Herstellung von U-Pu-Mischoxidbrennstäben erfolgt im Prinzip auf die gleiche Art wie mit reinem $UO_2$: Herstellen des Mischoxidpulvers, Pressen der Tabletten, Sintern, Schleifen, Füllen und Verschweißen der Hüllrohre. Alle diese Arbeitsgänge werden jedoch in „Handschuhkästen" durchgeführt. Das sind geschlossene Kästen mit Fenstern, in die nur mit Gummihandschuhen hineingegriffen werden kann, die fest und luftdicht mit den Kästen verbunden sind. Im Kasten herrscht Unterdruck, so daß auch im Fall eines kleinen Lecks kein Plutoniumstaub aus dem Innern herausgelangen kann. Dieses Barriereprinzip wird wiederholt: Mehrere solcher Handschuhkästen stehen in einem „Caisson" aus Stahlblech, in dem ein Unterdruck gegenüber der Fabrikhalle gehalten wird, in der die „Caissons" stehen. In der Fabrikhalle wiederum wird ein Unterdruck gegenüber der Außenumgebung gehalten.




*Plutonium-Verarbeitung im Handschuhkasten* Foto: KWU

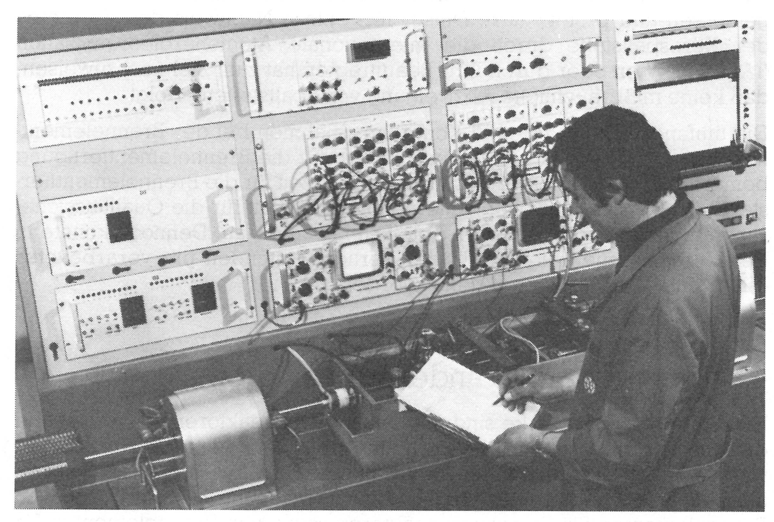
Diese Schutzbarrieren in Verbindung mit mehrfachen, unabhängigen Lüftungs- und Filtersystemen, ergänzt durch Plutoniumdetektions- und Alarmeinrichtungen, erlauben die Verarbeitung des Plutoniums ohne Gefährdung für Personal oder Umgebung.

Für große Durchsätze wird eine weitgehende Mechanisierung und Automatisierung der Fertigung erwogen.

## 4.2.5 Qualitätssicherung, Fertigungs- und Spaltstoffflußkontrolle

Für einen störungsfreien Betrieb der Kernkraftwerke kommt es ganz entscheidend auf die hohe Qualität der eingesetzten Brennelemente an. Größere Brennelementschäden würden den Routinebetrieb des Kernkraftwerks stören und dadurch Folgekosten verursachen, die den Eigenwert der Brennelemente weit übersteigen. Bei der Brennelementfertigung nimmt deswegen die Qualitätssicherung einen hohen Rang ein. Die dafür notwendigen vielen Kontrollen und Zwischenprüfungen dienen lediglich

zum Nachweis der Produktqualität; das Erreichen der geforderten Qualitätseigenschaften ist nur als Ergebnis vorhergehender Planung möglich, d.h. durch Auswahl und Anwendung geeigneter Produktionsmethoden.



*Ultraschallprüfung von Hüllrohren* Foto: Mannesmann-Röhrenwerke AG

Die Kontrollen, die mit den Tests der Ausgangsmaterialien beginnen (z.B. mit der vollständigen Überprüfung der angelieferten Hüllrohre auf Fehlerfreiheit durch Ultraschall) und die jeden Fertigungsschritt überwachen bis hin zur Endkontrolle der fertigen Brennelemente, sind Teil des umfassenden Qualitätssicherungssystems, das alle Bereiche der Brennelementfertigung lückenlos überdeckt. Die Protokolle der zahlreichen Messungen und Prüfungen dokumentieren systematisch und vollständig den gesamten Herstellungsablauf und erlauben später, nach Abbrand der Brennelemente im Reaktor, Rückschlüsse über die Auswirkungen der Fertigungsverhältnisse auf das Betriebsverhalten.

Der Brennelementhersteller verfolgt die Qualitätssicherung, um eine gleichmäßig hohe Qualität der Brennelemente dem Kunden gegenüber garantieren zu können. Im Auftrag der Genehmigungsbehörde wird das Qualitätssicherungssystem des Herstellers von unabhängigen Gutachtern (gewöhnlich dem zuständigen Technischen Überwachungsverein) überprüft. Grund dafür ist die besondere Bedeutung, die der Brennelementqualität für den störungsfreien Betrieb der Kernkraftwerke zukommt.

Weiter prüft gewöhnlich der Kunde, das Energieversorgungsunternehmen, durch eigene Beauftragte die Einhaltung der Qualitätsstandards bei der Fertigung nach. Einwandfreie Brennelemente helfen die Stromerzeugungskosten niedrig zu halten. So wird von mehreren Seiten auf die Einhaltung hoher Qualitätsnormen geachtet.

Daneben werden weitere Kontrollen durchgeführt, die auf den Verbleib der Spaltstoffe hinzielen (Spaltstoffflußkontrollen). Durch Wägen und Messen des Urangehalts und seiner Isotopenzusammensetzung wird der Fluß der Kernspaltstoffe an bestimmten Punkten der Fertigung fortlaufend gemessen und protokolliert. Dieser lückenlose Nachweis des Verbleibs der Kernspaltstoffe durch die Internationale Atomenergieorganisation (IAEO) in Wien oder durch ihre Beauftragten hat zum Ziel nachzuweisen, daß keine mißbräuchliche Abzweigung von Spaltstoffen erfolgt.

Die umfangreichen Prüf- und Kontrollmaßnahmen bei der Brennelementherstellung machen sich bei dem Aufwand für die Brennelementfertigung bemerkbar. Über 40% der gesamten Arbeitszeit für die Brennelementherstellung wird bei deutschen Unternehmern derzeit für die Qualitätssicherung aufgewendet, und dieser Anteil steigt weiter an. Dennoch konnte in der Vergangenheit die Anzahl der Fertigungsstunden pro verarbeitetes Kilogramm Uran deutlich gesenkt werden.

## 4.3 Brennelemente anderer Reaktoren

Nicht alle Kernkraftwerke sind mit Leichtwasserreaktoren ausgerüstet. In diesem Abschnitt soll auf die Fertigung der Brennelemente für Schwerwasserreaktoren, für schnelle Brutreaktoren und für Hochtemperaturreaktoren eingegangen werden. Auf eine Darstellung der Fertigung von Brennelementen für Forschungsreaktoren sowie von Brennelementen für MAGNOX- und AGR-Anlagen, die nicht mehr gebaut werden, soll hier verzichtet werden.

Der Aufbau der Brennelemente für Schwerwasserreaktoren (HWR) als Brennstabbündel ist dem der LWR-Brennelemente sehr ähnlich. Die Moderatorsubstanz Schwerwasser, $D_2O$, die gleichzeitig Kühlmittel ist, erfordert jedoch eine vom LWR unterschiedliche neutronenphysikalische Auslegung der Brennelemente und erlaubt die Verwendung von Natururan. Dank der besseren Neutronenökonomie des schweren Wassers, das thermische Neutronen viel weniger stark absorbiert als gewöhnliches leichtes Wasser, $H_2O$, kann nicht angereichertes Uran (Natururan) in Form von $UO_2$-Tabletten als Brennstoff verwendet werden.

Um das Moderator-Schwerwasser bei möglichst niedriger Temperatur halten zu können, während das Kühlmittel-Schwerwasser sich möglichst stark erhitzen soll, sind die Brennelemente der Schwerwasserreaktoren in zylindrischen Kühlkanälen angeordnet. Daraus ergibt sich der kreisförmige Querschnitt der Schwerwasserelemente mit konzentrischer Anordnung der Brennstäbe.

In Schwerwasserreaktoren vom Druckkesseltyp (Beispiel: MZFR, Karlsruhe, und CNA, Atucha, Argentinien) werden lange (MZFR: 3m, CNA: 5,30m) Stabbündelbrennelemente in die vertikalen Kühlkanäle eingesetzt.

Da die Steuerstäbe bei allen Schwerwasserreaktoren außerhalb der Brennelemente angeordnet sind, entfallen Steuerstabführungsrohre als tragende Teile wie im DWR-Brennelementskelett.

Im Schwerwasserreaktor vom Druckröhrentyp (CANDU-Reaktoren) liegen die Kühlkanäle horizontal, sie wirken gleichzeitig als Druckgefäße für

den Kühlmittelkreislauf. Die Brennelemente sind hier als kurze (ca. 50 cm lange) Stabbündel ausgebildet, die einfach hintereinander wie Kartuschen in die Druckrohre hineingeschoben werden. Durch die geringe Baulänge der CANDU-Elemente genügen zwei Endstücke und ein Abstandshalter auf halber Länge, um die 28 Brennstäbe sicher in ihrer Position zueinander zu fixieren und dem Bündel die notwendige mechanische Stabilität zu geben.

Da der Aufbau der Brennelemente für Schwerwasserreaktoren dem der LWR-Brennelemente sehr ähnlich ist, die verwendeten Materialien gleich sind (Zirkonlegierungen als Hüllmaterial, gesinterte $UO_2$-Tabletten als Brennstoff), ist auch ihr Fertigungsprozeß dem der LWR-Brennelemente ähnlich. Auf eine besondere Beschreibung der Fertigung kann deswegen hier verzichtet werden.

Die Brennelemente für schnelle Brutreaktoren (SBR) sind zwar auch vom Stabbündeltyp, doch gibt es bei ihnen einige wesentliche Unterschiede zum LWR-Brennelement, die sich auch auf die Fertigung auswirken. Der Brennstoff ist stark plutoniumhaltig, deswegen erfordert seine Verarbeitung die besonderen Sicherheits- und Vorsichtsmaßnahmen, die bereits im Abschnitt 4.2.4 dargestellt worden sind. Der Einsatz von flüssigem Natrium als Kühlmittel und die höheren Kühlmitteltemperaturen führen zur Verwendung von Edelstahl als Hüllmaterial für die Brennstäbe.

Die aus wirtschaftlichen Gründen angestrebte intensive Nutzung des Brennstoffs, die sich in vergleichsweise hohen thermischen Belastungen widerspiegelt (vgl. Tabelle 9), führt zur Aufteilung des Brennstoffs auf viele dünne Brennstäbe mit Durchmessern von 6 bis 8 mm und geringen Hüllrohrwandstärken von 0,4 bis 0,7 mm. Dadurch steigt die Anzahl der zu fertigenden Tabletten stark an.

Jeder Brennstab ist mit zwei verschiedenen Tablettensorten zu befüllen. Plutoniumfreie $UO_2$-Tabletten in den Stäben bilden den oberen und unteren axialen Brutmantel. Dazwischen sind die plutoniumhaltigen $PuO_2/UO_2$-Tabletten angeordnet, die die aktive Kernzone ausmachen (vgl. Abschnitt 4.2.2). Die Tabletten tragen an den Stirnseiten Vertiefungen (sog. „dishing"), um bei der Wärmeausdehnung der Tabletten die Formänderung zu verringern. Trotz dieser geringen Unterscheidungsmerkmale muß beim Befüllen der Stäbe zusätzlich auf Nichtverwechseln der Tablettenarten geachtet werden.

Tabelle 9: Gegenüberstellung thermischer Kenndaten für SBR- und LWR-Brennelemente

| | SBR | LWR |
|---|---|---|
| mittlere Brennstoffbelastung kW/kg $(U,Pu)O_2$ | über 100 | rd. 30 |
| maximale Heizflächenbelastung $W/cm^2$ | 250 | 160 |
| mittlere Leistungsdichte im Kern kW/l | 400 | 85 |

An einer weitgehenden Automatisierung bzw. Mechanisierung der Fertigungsverfahren wird gearbeitet. Dadurch könnte die Fertigung auch fernbedient hinter starken Abschirmwänden ablaufen, was die Verarbeitung von stärker radioaktivem mehrfach rezykliertem Plutonium oder stark Americium-haltigem Plutonium ermöglichen würde. Diese Automatisierung könnte zur Verwendung anderen Brennstoffs führen, z.B. zum Einvibrieren kugeliger Brennstoffteilchen anstelle des Einfüllens von Tabletten, die für Fernbedienung besser geeignet sind.

Die Fertigung der radialen äußeren Brutelemente, die kein Plutonium enthalten, weist keine Besonderheiten gegenüber der Fertigung von LWR-Brennelementen auf.

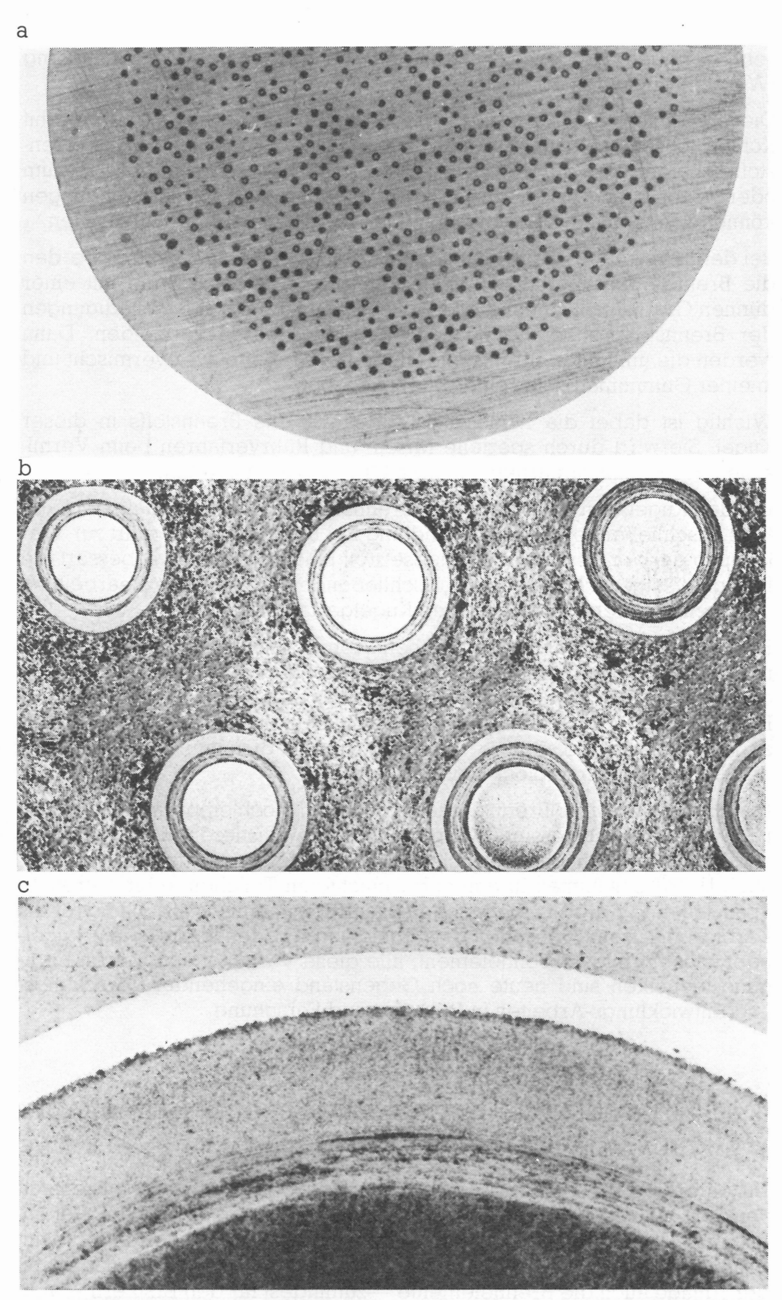
Die Brennelemente der Hochtemperaturreaktoren (HTR) bestehen hauptsächlich aus Graphit. Der hochtemperaturfeste Graphit wirkt als Neutronenmoderator, als Wäremeleitmedium, das die Wärme vom Brennstoff zum Kühlmedium Heliumgas leitet, und als Strukturmaterial, das dem Reaktorkern Form und Struktur gibt. Entsprechend den beiden Reaktortypen, die weiterentwickelt werden, dem Kugelhaufenreaktor und dem Reaktor mit blockförmigen Brennelementen, gibt es zwei Typen von Brennelementen.

Der Kugelhaufenreaktor (Beispiele: Versuchsreaktor AVR, Jülich, und THTR-Kernkraftwerk Uentrop-Schmehausen) besteht aus einer Schüttung von vielen (beim THTR-Schmehausen 675000) kugelförmigen Brennelementen. Zwischen den Brennelementkugeln strömt das Kühlgas Helium. Die einzelne Brennelementkugel besitzt einen Durchmesser von 6 cm. Eine äußere 0,5 cm dicke Graphitschicht umschließt das brennstofftragende Kugelinnere (Ø = 5 cm) (siehe Foto S. 71, a).

Der Brennstoff liegt in Form vieler kleiner Kügelchen („coated particles") vor. Ein Kern aus $(Th,U)O_2$ mit einem Durchmesser von 0,45 mm ist mit einer dünnen, porösen Kohlenstoffschicht ummantelt, die zur Spaltproduktrückhaltung wiederum von einer harten Schicht aus pyrolytischem Kohlenstoff umhüllt ist. Der Durchmesser des Kerns mit den zwei Kohlenstoffumhüllungen beträgt 0,75 mm(siehe Foto S. 71, b, c). Viele solcher Brennstoffpartikel werden in eine Graphitmatrix eingebettet und bilden das brennstofftragende Innere der Brennelementkugel.

Der Reaktor mit blockförmigen Brennelementen wird aus prismatischen, sechseckigen Graphitblöcken von etwa 80 cm Höhe und 36 cm Durchmesser aufgebaut. Diese Blöcke enthalten axiale parallele Bohrungen, von denen einige mit Brennstoff in Form der oben beschriebenen „coated particles" vermischt mit Graphitpulver beladen sind; die anderen Bohrungen werden vom Kühlgas durchströmt.

Die Fertigung der Brennstoffpartikel beginnt mit der Herstellung der uran- bzw. thoriumhaltigen Brennstoffkerne. Dafür sind verschiedene Verfahren entwickelt worden. Ein trockenes Granulierungsverfahren wurde bei der Herstellung der AVR-Brennstoffpartikel eingesetzt, ein Naßverfahren bei der Herstellung der Brennstoffpartikel für den THTR. Die Naßverfahren beruhen darauf, daß Flüssigkeitsstrahlen, die aus einer Düse austreten, zu Tröpfchen definierter Größe aufreißen. Diese Tröpfchen werden durch Wasserentzug zum Gelieren gebracht oder durch Reaktionen zum Verfestigen. Man erhält so kugelförmige Partikel definierter Größe mit




*Kugelförmiges Brennelement des Hochtemperaturreaktors mit „coated particles"* Foto: Nukem/Hobeg

sehr geringen Größenschwankungen, die nach einer Vorbehandlung (Waschen, Trocknen, Kalzinieren) gesintert werden können.

Diese gesinterten $UO_2$- bzw. $(U,Th)O_2$-Kerne werden im Wirbelbett mit Kohlenstoffschichten umhüllt (evtl. auch mit einer SiC-Schicht). Der Kohlenstoff scheidet sich durch Pyrolyse von Kohlenwasserstoffen ab. Helium oder Argon dient als Trägergas. Durch Wahl der Pyrolysebedingungen können Schichten der gewünschten Eigenschaften aufgebracht werden.

Bei der Herstellung der Brennelemente des Kugelhaufenreaktors werden die Brennstoffpartikel anschließend zunächst wie ein Dragée mit einer dünnen Graphitschicht umgeben („overcoating"). Sie soll Beschädigungen der Brennstoffpartikel beim nachfolgenden Pressen vermeiden. Dann werden die umhüllten Brennstoffpartikel mit Graphitpulver vermischt und in einer Gummimatrize zu einer Kugel gepreßt.

Wichtig ist dabei die homogene Verteilung des Brennstoffs in dieser Kugel. Sie wird durch spezielle Misch- und Rührverfahren beim Vermischen der Brennstoffpartikel mit dem Graphitpulver erreicht.

Um den Kugelkern wird dann eine brennstofffreie Graphitschale gepreßt. Eine anschließende Wärmebehandlung bei 800 bis 1800° C führt zur Verkohlung der vor dem Pressen zugesetzten Bindemittel und verbessert die Festigkeitseigenschaften. Eine abschließende mechanische Bearbeitung gibt dem Brennelement die exakte Kugelgestalt.

Bei der Herstellung der prismatischen Brennelemente wird der Brennelementblock aus Graphit zunächst mechanisch bearbeitet sowie die Bohrungen für das Kühlgas und zur Aufnahme des Brennstoffs angebracht. Die Brennstoffpartikel werden mit Graphitpulver und Bindemitteln vermischt zu Formkörpern („compacts") verpreßt und in die dafür vorgesehenen Bohrungen im Graphitblock geladen.

Die Entwicklung des Brennelementes für den Hochtemperaturreaktor ist noch nicht abgeschlossen. Mehrere Konzepte existieren noch nebeneinander: Spaltstoff (hochangereichertes Uran) und Brutstoff (Thorium, evtl. auch U 238) zusammen in einem beschichteten Teilchen, oder getrennte Spaltstoff- und Brutstoffteilchen, den Brennstoff chemisch als Oxid oder als Karbid einsetzen, zwei oder drei Schichten um den Kern legen, kugel- oder blockförmiges Brennelement, alle diese Varianten und deren Fertigungstechniken sind heute noch Gegenstand eingehender Forschungs- und Entwicklungs-Arbeiten in Industrie und Forschung.

## 4.4 Wirtschaftliche Aspekte der Brennelementfabrikation

Da einerseits die Funktionstüchtigkeit eines Kernkraftwerks wesentlich von der Qualität der Brennelemente abhängt, andererseits bei der Genehmigung eines Kernkraftwerks sicherheitstechnische Nachweise für die mit Brennelementen beladene Anlage zu erbringen sind, werden häufig mit der Anlage auch die Brennelemente — zumindest für den Erstkern — vom gleichen Lieferanten bezogen. Jeder Reaktorlieferant legt deswegen auch Brennelemente aus und liefert sie aus eigener Produktionsstätte.

So machen in den USA die Brennelementfabriken von Westinghouse in Columbia, S. C., mit einer Fertigungskapazität von 1150 t/a DWR-Brennstoff und von General Electric in Wilmington, N.C., mit einer Kapazität von rd. 1000 t/a SWR-Brennstoff den Hauptanteil der amerikanischen Fertigungskapazität aus. Dazu kommen die Anlagen von Babcock & Wilcox mit 375 t/a und von Combustion Engineering mit 250 t/a für DWR-Brennstoff. In den USA gibt es nur einen unabhängigen Brennelement-Fabrikanten, Exxon Nuclear, der eine Fertigungskapazität von 600 t/a LWR-Brennstoff hat.

In Europa sind sieben Brennelementfabriken mit einer Gesamtfertigungskapazität von 2110 t/a in Betrieb, eine Anlage ist im Bau und eine weitere im Stadium der Genehmigung. In der Bundesrepublik Deutschland fabriziert die Reaktor-Brennelement-Union, eine Tochterfirma der KWU, mit einer Kapazität von derzeit 600 t/a LWR-Brennelemente für DWR- und SWR-Anlagen. Eine Fabrik der Exxon Nuclear, ausgelegt für eine Jahresfertigung von 200 t/a, hat mit dem Betrieb begonnen.

Auf dem Markt für Brennelementfabrikation besteht z. Z. ein Überangebot. Einem gesamten LWR-Brennelementbedarf von rd. 4000 t/a steht eine weltweite Produktionskapazität von 6500 t/a gegenüber. Je nach Einschätzung der Kernkraftwerkszubaurate und der Ausbauplanung der Brennelement-Fabrikanten kann man für den Zeitraum 1985 bis 1990 zwar ein Anwachsen der Brennelementnachfrage über die voraussichtliche Fertigungskapazität vorhersagen. Da aber die Bauzeit einer Brennelementfabrik mit zwei bis drei Jahren kurz ist im Vergleich mit dem Zeitraum von 10 bis 13 Jahren, der für den Bau eines Kernkraftwerkes erforderlich ist, und da außerdem der Investitionsaufwand für eine Brennelementfabrik im Vergleich mit anderen kerntechnischen Anlagen relativ gering ist, wird es auch in Zukunft kaum Engpässe infolge zu geringer Produktionskapazität geben.

Der starke und andauernde Wettbewerb auf dem Gebiet der Brennelementfertigung hat sicher erheblich mit dazu beigetragen, daß die Fertigungskosten für LWR-Brennelemente in den letzten Jahren bei etwa 350 DM/kg Uran annähernd konstant geblieben sind.

Wegen der großen wirtschaftlichen Bedeutung, die das zuverlässige Verhalten der Brennelemente für den Gesamtbetrieb des Kernkraftwerkes hat, werden vom Kunden in dieser Hinsicht Garantien vom Brennelementlieferanten verlangt. Bei diesen Garantievereinbarungen müssen natürlich auch Vereinbarungen über den Gebrauch der Brennelemente, d.h. ihren Einsatz im Reaktor, getroffen werden. So ergibt sich fast von selbst der Übergang vom reinen Fertigungsvertrag zum Vertrag über Brennelementservice, d.h., mit den Brennelementen wird der Umsetzungsplan, die Planung der Brennelement-Ein- und -Umsetzungen mitgeliefert. Zur Überprüfung des Betriebsverhaltens der Brennelemente und zur Erkennung von Schäden gehört die Inspektion der Brennelemente. Auch diese Leistung und weitere Service-Aktivitäten können mitkontrahiert werden.

Die Brennelementherstellung entwickelt sich so zu einer kompletten Brennstoffdienstleistung für den Kernkraftwerksbetreiber.

Literatur zu Kapitel 4


[1] A. Klusmann, H. Völker: Brennelemente von Kernreaktoren
München: Thiemig-Verl. 1969

[2] V. W. Schneider, F. Plöger: Herstellung von Brennelementen
In: C. Keller, H. Möllinger (Hrsg.): Kernbrennstoffkreislauf, Bd. 1
Heidelberg: Hüthig-Verl. 1978, S. 163—183

[3] R. Holzer: Konstruktion des Reaktorkerns
In: W. Oldekop (Hrsg.): Druckwasserreaktoren für Kernkraftwerke
München: Thiemig-Verl. 1974, S. 80—105

[4] H. Roepenack: Die Herstellung von Brennelementen für Druck- und Siedewasserreaktoren
In: Schweizerische Vereinigung für Atomenergie (Hrsg.): Informationstagung „Die Versorgung Europas mit Kernbrennstoffen" 5./6. März 1979 in Zürich-Oerlikon
Bern: 1979, S. 65—75

# 5. Transporte im Brennstoffkreislauf

Aus den vorangegangenen Abschnitten geht bereits hervor, daß die im Brennstoffkreislauf notwendigen Fertigungsschritte in Industrieanlagen durchgeführt werden, die in der Regel geographisch voneinander getrennt sind. Das zur Überbrückung der räumlichen Trennung erforderliche Transportsystem hat wegen des besonderen Charakters der Transportgüter oft erhebliche Besonderheiten, die von den auf diesem Sektor tätigen Unternehmen sowohl ein hohes Maß von Spezialkenntnissen und Erfahrungen verlangen, als auch die Bereitstellung von kostspieligen technischen Spezialausrüstungen erfordern. Dies gilt insbesondere bei Transporten im Entsorgungssektor des Brennstoffkreislaufes.

## 5.1 Transportwege und Transportgüter

Die ersten Transportoperationen im Versorgungssektor sind wegen des sehr geringen radiologischen und chemischen Gefährdungspotentials unproblematisch. Das in der Grube gebrochene Erz wird zur Erzaufbereitung gebracht. Im Kapitel 2 (Natururan) wurde bereits erwähnt, daß man aus Kostengründen gezwungen ist, den Transportweg des Uranerzes so kurz wie möglich zu halten.

Das in der Aufbereitungsanlage erzeugte Urankonzentrat (Yellow Cake) muß zur Konversionsanlage transportiert werden, wobei Lastwagen, Eisenbahn und Schiff als Transportmittel eingesetzt werden. Das Konzentrat wird in handelsüblichen Stahlfässern mit 200 bzw. 400 Liter Fassungsvermögen verpackt. Die Transportstrecken sind in der Regel lang, da nur wenige Länder in der Welt über große Konversionsanlagen verfügen.

Das in der Konversionsanlage zu Uranhexafluorid ($UF_6$) umgewandelte Uran muß zur Anreicherungsanlage gebracht werden. Da das kristalline $UF_6$ oberhalb 56,5 ° C gasförmig wird, muß dieses Material in stählernen Druckbehältern transportiert und gelagert werden. Während das Strahlenrisiko bei $UF_6$ vernachlässigbar gering ist, muß der chemischenToxizität wegen sichergestellt werden, daß der Druckbehälter auch bei Unfällen dicht bleibt. Da nach der Anreicherung eine höhere Spaltstoffkonzentration im $UF_6$ vorliegt, müssen bei der Beförderung von angereichertem $UF_6$ zum Brennelementhersteller Kritikalitätsgesichtspunkte berücksichtigt werden.

$UF_6$-Transporte werden seit Jahren routinemäßig über Straße, Schiene und See abgewickelt.

Nach Fertigstellung der Brennelemente müssen diese zu den Reaktorstationen befördert werden. In der Bundesrepublik erfolgt dies in der Regel mit Lastwagen.

Nach der Nutzung des Kernbrennstoffs im Kraftwerk müssen die jetzt hochradioaktiven Brennelemente, gegebenenfalls über ein BE-Zwischenlager, zur Wiederaufbereitungsanlage transportiert werden. Von hier sind die rückgewonnenen Wertstoffe Uran und Plutonium in fester oder flüssiger Form in die Fertigungsstätten des Versorgungssektors zurückzubrin-

gen, während der hochaktive flüssige Waste[1]) (HAW) nach Verfestigung zu glasartigen Formkörpern zur Endlagerstätte transportiert werden muß.

Nach dem ursprünglichen deutschen Entsorgungskonzept sollten in der Bundesrepublik das Zwischenlager und die Aufarbeitung der abgebrannten Brennelemente sowie die Weiterverarbeitung des Plutoniums, die Verfestigung des hochaktiven Abfalls und dessen Lagerung räumlich und funktional in einem Industriekomplex zusammengeschlossen werden. Bei der Realisierung eines solchen Entsorgungszentrums könnten Transporte von hochaktiven Stoffen und Plutonium über öffentliche Verkehrswege auf ein Minimum reduziert werden. In Abb. 15 sind die wichtigsten Transporte und Transportwege im Brennstoffzyklus der Leichtwasserreaktoren zusammenfassend dargestellt.

## 5.2 Vorschriften und Regelungen

Da Transporte mit spaltbarem und radioaktivem Material oft grenzüberschreitend sind, ist es erforderlich, einheitliche oder gegenseitig anerkannte Vorschriften und Regelungen für die Transportabwicklung sowie die verwendeten Behälter und Verpackungen zu haben. Auf der Basis gewonnener Erfahrungen hat die Internationale Atomenergie-Organisation (IAEO) in Wien Richtlinien für den Transport von radioaktiven Stoffen und Spaltstoffen erarbeitet [1]. Diese ständig dem neuesten Stand der Forschung angepaßten Richtlinien sind als Empfehlungen in die meisten internationalen und nationalen Vorschriften für die Beförderung von Kernmaterialien auf Straße, Schiene, Wasser und in der Luft eingegangen. Die Vorschriften regeln sowohl die Art der Verpackung als auch die Abwicklung der Transporte selbst.

Die konstruktiven Anforderungen an Behälter und Verpackungen müssen an den besonderen Eigenschaften und an den zu befördernden Mengen von nuklearen Substanzen ausgerichtet werden. Zu berücksichtigen sind dabei insbesondere

1. die Radiotoxizität des Transportgutes, d.h. das spezifische gesundheitliche Gefährdungspotential des Stoffes
2. die Strahlungsintensität des Stoffes
3. die Wärmeentwicklung, die durch den radioaktiven Zerfall im Stoff selbst verursacht wird
4. die Spaltbarkeit des Materials, die ohne entsprechende Mengenbegrenzung und sichere Geometrie zu kritischen Anordnungen führen kann.



1) Waste (englisch) = Abfall

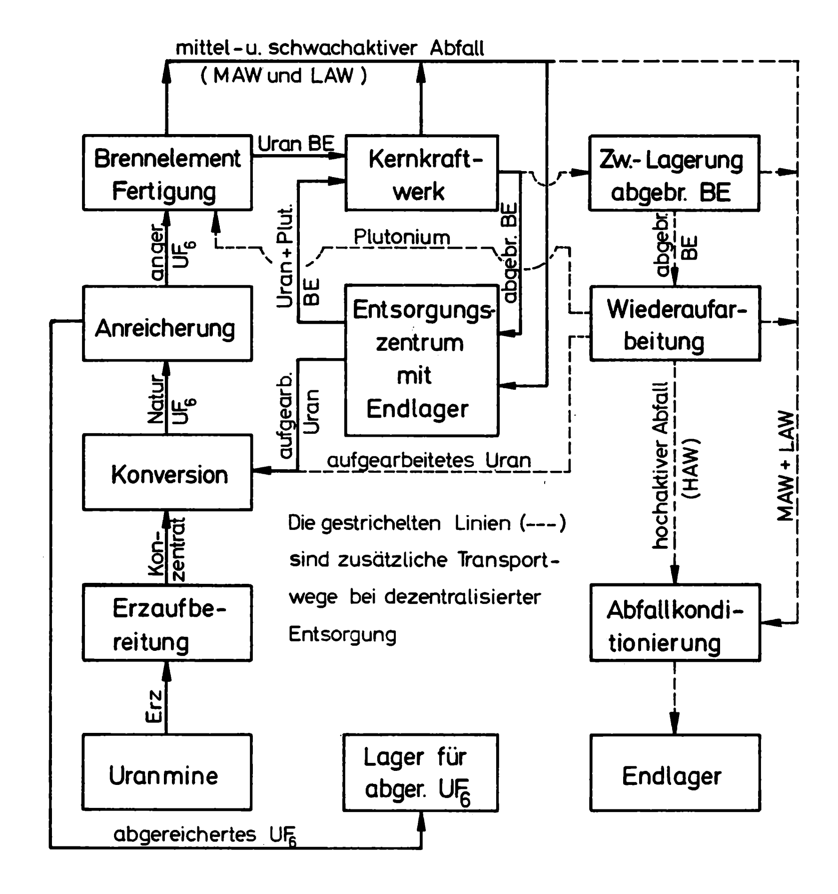



Abb. 15: Transporte im Brennstoffkreislauf

## 5.3 Behälter und Verpackungen

Das sich aus den im vorhergehenden Abschnitt genannten Eigenschaften des nuklearen Materials ergebende Gefährdungspotential bedingt entsprechende Sicherheitsanforderungen an die Behälter:

- die sichere Umschließung
- die Strahlenabschirmung
- die Wärmeabfuhr
- die Kritikalitätssicherheit

Mit steigendem Gefährdungspotential werden drei unterschiedliche Behälterklassen gefordert:

1. die schwere Industrieverpackung
2. die Typ-A-Verpackung
3. die Typ-B-Verpackung

Die schwere Industrieverpackung ist nur für Material mit sehr schwacher spezifischer Aktivität zulässig. Bei Verpackungen dieser Klasse kann in Kauf genommen werden, daß bereits ein leichterer Transportunfall zu Behälterschäden führt.

Typisch für diese Behälterklasse sind die Stahlfässer, die für den Transport von Yellow Cake benutzt werden (siehe Foto „Lagerung von Urankonzentrat").



*Lagerung von Urankonzentrat* Foto: BNFL

Für schwach radiotoxische feste Substanzen oder geringe Mengen mit höherer spezifischer Aktivität werden Typ-A-Verpackungen gefordert, die bei grober Behandlung und geringfügigen Unfällen dicht bleiben. Das bei einem mittelschweren Unfall einkalkulierte Versagen darf für die unmittelbar gegenwärtigen Personen nicht zu unzulässig hohen Strahlendosen führen. Typ-A-Behälter müssen bei einem Falltest aus 1,20 m auf eine unnachgiebige Fläche und dem Aufprall auf einen feststehenden Dorn dicht bleiben, bevor sie amtlich anerkannt werden.

Sofern in einem solchen Behälter radioaktive Flüssigkeiten transportiert werden sollen, müssen sie den schärferen Falltest der Typ B-Behälter erfüllen.

Für den Transport von größeren Mengen radioaktiver Stoffe, die ein hohes Gefährdungspotential darstellen, werden nur solche Behälter amtlich zugelassen, die auch bei den schwersten denkbaren Unfällen noch dicht bleiben. Die Tests, die das Modell eines Typ-B-Behälters nacheinander überstehen muß, sind:

1. freier Fall auf eine unnachgiebige Oberfläche aus 9 m Höhe und
2. freier Fall auf einen Stahldorn, danach
3. Feuertest bei 800 ° C über einen Zeitraum von 30 Minuten
4. Versenken des Behälters auf über 90 cm Wassertiefe während 8 Stunden.

Diese Testbedingungen simulieren die maximal zu erwartenden Belastungen, denen der Behälter bei einem Unfall ausgesetzt werden könnte. Dichtheit des Behälters und Unversehrtheit des Inhalts müssen auch unter derart extremen Bedingungen gewährleistet bleiben.

Die nächste Forderung, die von der Verpackung radioaktiven Materials erfüllt werden muß, ist eine hinreichende Strahlenabschirmung der Umgebung. Die Dosisleistung an der Oberfläche des Behälters darf 200 Millirem pro Stunde (mr/h), die in 1 Meter Entfernung 10 mr/h nicht überschreiten. Diese Forderung kann durch entsprechende Wandstärken und den zusätzlichen Einbau von Abschirmmaterial erfüllt werden. Sofern zusätzlich Neutronenstrahlung, wie z. B. beim Transport von bestrahlten Kernbrennstoffen, auftritt, muß der Behälter zusätzlich mit Neutronenabsorbern ausgerüstet werden.

Beim Transport von hochaktivem Material muß neben der starken Strahlung die mit dem radioaktiven Zerfall einhergehende Wärmeentwicklung beachtet werden. Aus diesem Grund müssen Behälter für den Transport derartiger Substanzen so ausgelegt werden, daß eine ausreichende Wärmeabfuhr sichergestellt ist. Im allgemeinen reicht dafür neben guter Wärmeableitung die Vergrößerung der Behälteroberfläche durch Kühlrippen, Stachel u. ä. Für Stoffe mit extrem hoher Wärmefreisetzung wurden Behälter mit Wasserumlaufkühlung entwickelt.

Die bisher behandelten Anforderungen an Transportbehälter berücksichtigen Radiotoxizität, Strahlungsintensität und Wärmeentwicklung. Diese Kriterien berücksichtigen jedoch noch nicht die Eigenschaft der Spaltbarkeit von Kernbrennstoffen. Werden Spaltstoffe transportiert, so muß auch unter schweren Unfallbedingungen sichergestellt sein, daß keine Kritikalität auftritt. Die Kritikalitätssicherheit beim Transport von Kernbrennstoffen wird erzielt durch die Begrenzung der Spaltstoffmengen pro Einzelbehälter und Gesamttransport, durch Einbau von Neutronenabsorbern und Moderatoren in die Behälter, sowie durch die zwangsläufige Wahrung von Sicherheitsabständen von Behälter zu Behälter durch die Verwendung von Trennelementen. Typ-B-Behälter und Verpackungen für spaltbares Material müssen nach den in der Bundesrepublik geltenden Vorschriften durch die Physikalisch-Technische Bundesanstalt Braunschweig (PTB) und die Bundesanstalt für Materialprüfung Berlin (BAM) geprüft und zugelassen werden.

Eine Übersicht über die Sicherheitsmaßnahmen bei Behältern, die im Brennstoffkreislauf genutzt werden, vermittelt Tab. 10.

## 5.4 Praxis der nuklearen Transporte

Im folgenden sollen Technik und Abwicklung der wichtigsten Transporte innerhalb des nuklearen Brennstoffkreislaufes beschrieben werden.

Uranerz:

Die Beförderung von Uranerz wird in der Regel mit Hilfe von schweren offenen Lastkraftwagen durchgeführt. Die Beladung erfolgt entweder in der Grube selbst oder am Förderschacht, von wo aus das Roherz auf dem kürzesten Weg zum Erzlager oder direkt in die Aufbereitungsanlage gebracht wird. Da Grube und Aufbereitungsanlagen meist auf dem gleichen Gelände angesiedelt sind, werden öffentliche Verkehrswege selten in Anspruch genommen. Eine Ausnahme hiervon besteht in der Bundesrepublik insofern, als das aus dem Versuchsabbau im Schwarzwald gewonnene Uranerz über den Schienenweg zur einzigen deutschen Uranaufbereitungsanlage bei Birkenfeld/Nahe gebracht wird. Besondere Vorkehrungen sind wegen der schwachen Aktivität nicht erforderlich, so daß derartige Transporte praktisch genauso abgewickelt werden können wie bei nichtaktiven Metallerzen.

Tabelle 10: Sicherheitsmaßnahmen bei Transportbehältern

| Risiko | Maßnahmen |
|---|---|
| Radiotoxizität | a) Fixierung des radioaktiven Materials an Zement oder Bitumen<br>Verwendung von Innenbehältern<br>b) Konstruktive Auslegung des Behälters gegen Leckagen und Bruch auch unter Unfallbedingungen |
| Strahlung | a) $\beta$ und $\gamma$-Strahlung: Abschirmung durch Stahl, Blei, Beton u.ä.<br>b) Neutronenstrahlung: Abschirmung durch Polyäthylen, Holz u.ä. |
| Wärmeleistung | Mengenbegrenzung je Behälter<br>Gute Wärmeableitung durch Material und Konstruktion<br>Oberflächenvergrößerung durch Kühlrippen oder Stachel |
| Kritikalität | Beschränkung der Spaltstoffmenge pro Behälter<br>Beschränkung der Behälter pro Transport<br>Geometrisch sichere Anordnung des Spaltstoffes in jedem einzelnen Behälter<br>Geometrisch sichere Anordnung der Behälter eines Transportes zueinander |

Urankonzentrat:

Das in der Aufbereitungsanlage erzeugte Urankonzentrat wird in handelsübliche Stahlfässer mit einem Fassungsvermögen von 200 bzw. 400 ltr.

abgefüllt und in dieser Verpackungsform verschickt (Foto „Lagerung von Urankonzentrat, S. 78).

Da das Yellow Cake nur den natürlichen Spaltstoffgehalt von 0,7% U-235 aufweist und nur schwach radioaktiv ist, können derartige Transporte ebenfalls ohne besondere Vorkehrungen abgewickelt werden. Urankonzentrat kann in beliebiger Menge je nach den geographischen Gegebenheiten auf Straße, Schiene oder auf dem Wasserweg befördert werden.

Uranhexafluorid:

Da das kristalline $UF_6$ unter Normaldruck bereits bei Temperaturen über 56,5 °C verdampft und sich bei Kontakt mit der Luftfeuchtigkeit giftige Dämpfe bilden, wird dieses Material grundsätzlich in stählernen Druckbehältern gelagert und befördert. Die Beladung der Behälter erfolgt mit gasförmigem $UF_6$ bei Temperaturen von maximal 120 °C. Im Behälter läßt man das Gas abkühlen, wobei es sich wieder verfestigt. Zum Entleeren der Behälter werden diese durch Dampf oder elektrisch aufgeheizt, wobei das wieder gasförmige $UF_6$ praktisch verlustlos ausgetrieben wird.

Aus Kritikalitätsgründen muß beim Transport von $UF_6$ unterschieden werden, ob es sich hierbei um Natururan oder angereichertes Uran handelt.

Wegen des geringen Spaltstoffgehaltes von 0,7 % U-235 sind beim Natur-$UF_6$ (und beim abgereicherten $UF_6$) keine Vorkehrungen zur Kritikalitätssicherung erforderlich. Die Stahldruckbehälter vom Typ 48F für dieses Material haben ein Fassungsvermögen von etwa 12,3 Tonnen $UF_6$. Die Gesamtzahl von Behältern je Transport unterliegt keinen Beschränkungen.

Bei angereichertem Uran hingegen müssen die im vorigen Abschnitt erwähnten Kritikalitätsgesichtspunkte beachtet werden:

- bestimmte vom Anreicherungsgrad abhängige Höchstmengen je Behälter dürfen nicht überschritten werden
- die geometrisch sichere Anordnung des $UF_6$ muß durch die Auslegung des Druckbehälters gewährleistet und
- die Anzahl dieser Behälter je Transport begrenzt werden.

Ganz allgemein gilt, daß mit steigendem Anreicherungsgrad die zulässigen Fassungsvermögen und der lichte Durchmesser der Behälter geringer werden müssen (s. Tabelle 11). Im Gegensatz zum oben erwähnten Typ-48F-Behälter hat der Typ-30B-Behälter, der für den Transport von bis zu 5% angereichertem $UF_6$ zugelassen ist, nur noch ein maximales Fassungsvermögen von ca. 2,2 Tonnen.

Während des Transportes müssen die Behälter für angereichertes $UF_6$ zusätzlich mit einer stoßabsorbierenden und isolierenden Außenverpakkung versehen sein, die den Stahlzylinder vor Unfallfolgen abschirmt. Das Foto auf S. 60 zeigt einen Typ-30-B-Transportbehälter, der in den USA entwickelt wurde und seit vielen Jahren routinemäßig auf Straße, Schiene und See eingesetzt wird. In eiligen Fällen kann angereichertes $UF_6$ auch auf dem Luftweg transportiert werden.

Tabelle 11: Behälter für den Transport von Uranhexafluorid

| Behälter-typ | Material | $UF_6$-Inh. (kg) | Anreich. (% U-235) | Länge (cm) | Durchm. (cm) | Leergew. (kg) |
|---|---|---|---|---|---|---|
| 48 F | Stahl | 12272 | ≦ 1 | 381 | 122 | 2361 |
| 48 A | Stahl | 9548 | ≦ 1 | 307 | 122 | 2043 |
| 30 A | Stahl | 2247 | > 1—5 | 208 | 76 | 636 |
| 30 B | Stahl | 2279 | > 1—5 | 208 | 76 | 636 |
| 12 A | Edelstahl | 209 | > 1—5 | 137 | 30 | 84 |
| 8 A | Edelstahl | 116 | > 5—12,5 | 145 | 20 | 54 |
| 5 A | Edelstahl | 25 | > 12,5 | 91 | 13 | 25 |

Frische Brennelemente:

Da das unbestrahlte Uran in frischen Brennelementen sehr schwache spezifische Aktivität hat und überdies in den gasdichten Hüllrohren in der chemisch und mechanisch stabilen Form des Oxids eingeschlossen ist, sind für diese Transporte nicht einmal die Typ-A-Verpackungen erforderlich. Lediglich für Kritikalitätssicherheit bei Unfällen muß gesorgt werden. Daher werden in der Regel nur zwei Brennelementbündel in einem Container verpackt.

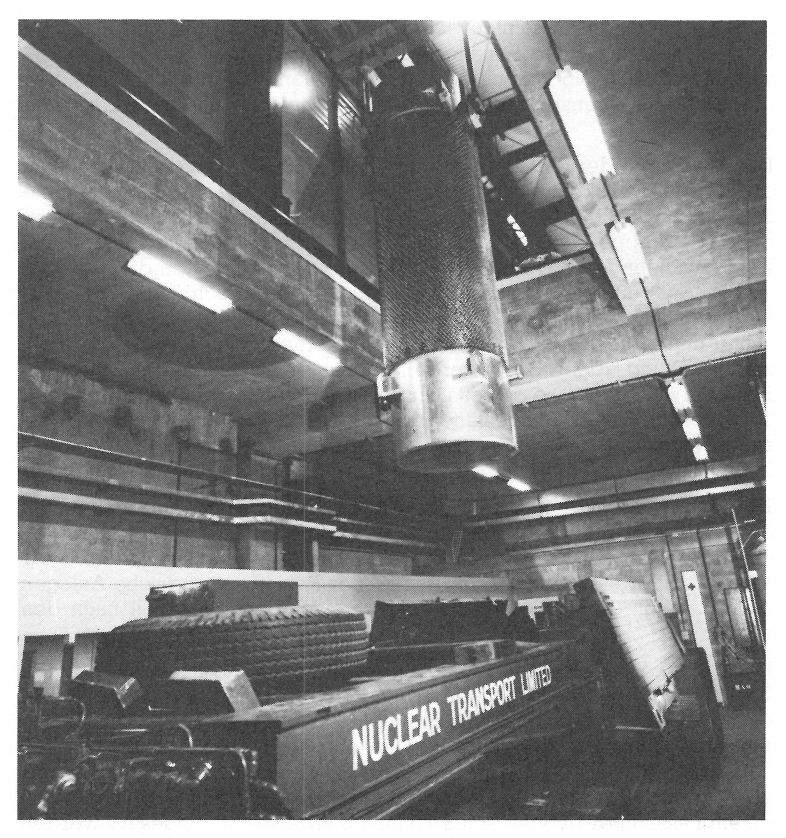
Wegen der mechanischen Empfindlichkeit der mit hoher Präzision gefertigten Brennelemente gegen Schockbelastungen müssen die Transportbehälter so ausgelegt werden, daß bei grober Behandlung und Unfällen kostspielige Schäden vermieden werden. Die Brennelemente werden daher innerhalb des Behälters auf einem unnachgiebigen starren Bett befestigt, das seinerseits auf stoßabsorbierenden Einbauten gelagert ist.

Bestrahlte Brennelemente:

Charakteristisch für bestrahlten Kernbrennstoff sind seine hohe spezifische Aktivität und Wärmeleistung sowie die Existenz der Spaltstoffe Uran und Plutonium. Beim Transport von ausgedienten Brennelementen müssen daher alle Risiken berücksichtigt werden, die in der Tabelle auf Seite 80 zusammengestellt sind. Behälter für den Transport abgebrannter Brennelemente müssen daher ausreichende Strahlenabschirmung aufweisen, kritisch sicher sein und die entstehende Nachzerfallswärme ableiten können. Die Kriterien für Typ-B-Behälter müssen erfüllt werden (s. d. Abschn. 5.3).

Das Foto auf S. 83 zeigt einen Transportbehälter für abgebrannte Brennelemente aus Druckwasserreaktoren. Er besteht, von innen nach außen betrachtet aus:

- einem Einsatzkorb, der meist aus gut wärmeleitendem Material gefertigt und mit Neutronengift versehen ist. Statt des Korbes können auch fest eingebaute Schächte zur Aufnahme der Brennelemente dienen.
- einer starken $\gamma$-Abschirmung aus Schwermetall, wie z. B. Stahl, Blei oder abgereichertes Uran
- einem Außenmantel aus Stahl




*Transportbehälter für abgebrannte Brennelemente* Foto: CEA/Jahan

- einer Neutronenabschirmung gegen Neutronenstrahlung
- Kühlrippen oder Stachel auf der Behälteroberfläche, die der Wärmeabfuhr dienen. Diese können auch durch ein Zwangskühlsystem ersetzt werden.
- Stoßkappen, die die Stirnseiten und Behälteröffnungen bei Unfällen schützen.

Derartige Behälter sind einschließlich der Stoßkappen etwa 5—7 m lang. Ihre Durchmesser liegen je nach Ladekapazität zwischen 1,8 und 2,5 m. Die Transportkapazitäten betragen zwischen 1 und 6 Tonnen, die Gesamtgewichte liegen wegen der schweren Abschirmungen zwischen 32 und 105 Tonnen.

Bis zum Gesamtgewicht von 35 Tonnen können diese Behälter auf der Straße transportiert werden. Bei höheren Gewichten muß der Schienenweg benutzt werden.

Behälter mit einem Gesamtgewicht von 120 Tonnen sind in Vorbereitung. Obwohl derartig große Behälter ein besseres Nutzlast-Gesamtgewichtsverhältnis haben, stößt man hinsichtlich der Handhabung, der Wärmeabfuhr und der Transportabwicklung auf technische und wirtschaftliche Grenzen.

Die Beladung der Behälter erfolgt in den Brennelementlagerbecken der Kernkraftwerke unter Wasser. Nach dem Beladevorgang werden die Behälter sorgfältig dekontaminiert und anschließend nach dem Anbringen der Schutzkappen auf LKW-Tieflader oder Eisenbahnwaggons geladen. Die Abwicklung der Transporte unterliegt den Vorschriften des Atomgesetzes (AtG) und der Strahlenschutzverordnung (StrlSchV). Im Inland ist jeder einzelne Transport 24 Stunden im voraus der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) anzuzeigen. Die Transporte müssen unter Polizeibewachung abgewickelt werden und unterliegen einer sogenannten Laufüberwachung. Die jeweils zuständigen Behörden der durch den Transport berührten Bundesländer kontrollieren die Einhaltung der erlassenen Vorschriften. Bei grenzüberschreitendem Verkehr gelten die jeweiligen nationalen Vorschriften und Gesetze.

Bis heute wurden mehr als 300 Transporte ausgedienter Brennelemente aus deutschen Reaktoren durchgeführt. Der größte Teil davon führte über die Straße. Etwa 1/3 der insgesamt abgewickelten Transporte führte zur Wiederaufbereitungsanlage Karlsruhe, der Rest in ausländische Anlagen in Frankreich, Belgien, England und zu einem geringen Teil nach den USA.

Nach einer Studie des Kernforschungszentrums Karlsruhe wird sich die Zahl der jährlich erforderlichen Transporte von LWR-Elementen von ca. 40 im Jahr 1980 auf rund 350 bis zum Jahr 2000 erhöhen. Diese Zahlen gelten für eine mittlere geschätzte Entwicklung der LWR-Kapazität von ca. 9 Gigawatt elektrisch (1980) auf rund 80 Gigawatt elektrisch (2000). Vorausgesetzt wurde ferner, daß ausschließlich große Transportbehälter mit einem Fassungsvermögen von 5 Tonnen Schwermetall eingesetzt werden und daß die Transporte direkt zu einem Entsorgungszentrum führen. Für den sich derzeit abzeichnenden Trend zur dezentralen Zwischenlagerung von verbrauchten Brennelementen muß sich die Anzahl der erforderlichen Transporte dann drastisch erhöhen, wenn sich die notwendigen Bewegungen zur unmittelbaren Entsorgung der Kraftwerke mit denen zur Entlastung der Zwischenlager addieren.

Aufgearbeiteter Brennstoff:

Bei der Aufarbeitung abgebrannter Kernbrennstoffe werden die hochradioaktiven Abfallstoffe, die Spaltprodukte, von den Wertstoffen Plutonium und Uran getrennt. Erstere müssen nach der Umwandlung in eine feste auslaugbeständige Form in ein Endlager verbracht werden, während Plutonium und Uran wieder in den Brennstoffkreislauf zurückgeführt werden.

Die verfestigten Spaltprodukte können im Prinzip in den gleichen Typ-B-Behältern transportiert werden, wie sie für ausgediente Brennelemente verwendet werden. Ein Prototyp-Transportbehälter für hochaktive Abfälle befindet sich in Entwicklung. Er soll für die Beförderung solcher Abfälle

dienen, die in etwa 20 cm dicken und 1 m langen Edelstahlbehältern eingeschmolzen sind [2]. Strahlung, Nachzerfallswärme und Neutronenaktivität der verfestigten Abfälle bedingen die gleichen Sicherheitsmaßnahmen wie bei den Transportbehältern für abgebrannte Brennelemente.

Häufigkeit und Umfang von Transporten hochaktiven Abfalls über öffentliche Verkehrswege sollten durch das Konzept des integrierten Entsorgungszentrums (örtliche Zusammenfassung von Wiederaufarbeitung, Abfallkonditionierung und Endlager) auf ein Minimum reduziert werden. Angesichts der Verzögerung dieses Projekts wird die Aufarbeitung verbrauchter Kernbrennstoffe vorerst im Ausland vorgenommen werden müssen, wobei neben den gewonnenen Wertstoffen voraussichtlich auch der verfestigte hochaktive Abfall in die Bundesrepublik zur Endlagerung zurückgebracht werden wird.

Beim Transport von Plutonium muß unterschieden werden, ob dieses in der festen Form des Plutoniumoxids oder als wässerige Plutoniumnitratlösung vorliegt. Wegen der hohen Radiotoxizität des Plutoniums werden ausschließlich Typ-B-Behälter verwendet.

Die Verpackung für das pulverförmige Oxid besteht aus einem inneren Stahlbehälter, der von einem äußeren stoßabsorbierenden und feuersicheren Sicherheitsbehälter eingeschlossen wird. Die Kritikalitätssicherheit wird durch eine sichere Geometrie (länglicher, schlanker Zylinder) und durch die Begrenzung des Inhalts auf 4 kg Pu je Behälter gewahrt.

Beim Transport der wässerigen Plutonium-Lösung muß über die vorgenannten Kriterien hinaus berücksichtigt werden, daß es durch Radiolyse (Zerlegung des Wassers durch Strahleneinwirkung in Wasserstoff und Sauerstoff) zu einem Druckaufbau im Behälter kommt, so daß dieser als Druckbehälter ausgelegt werden muß.

Zur Vermeidung von Kritikalität bei Unfällen oder unsachgemäßem Laden befindet sich jede einzelne Plutonium enthaltende Verpackung eines Transportes im Zentrum eines Stahlrohrkäfigs (bird cage), der den geometrisch sicheren Abstand von Verpackung zu Verpackung garantiert.

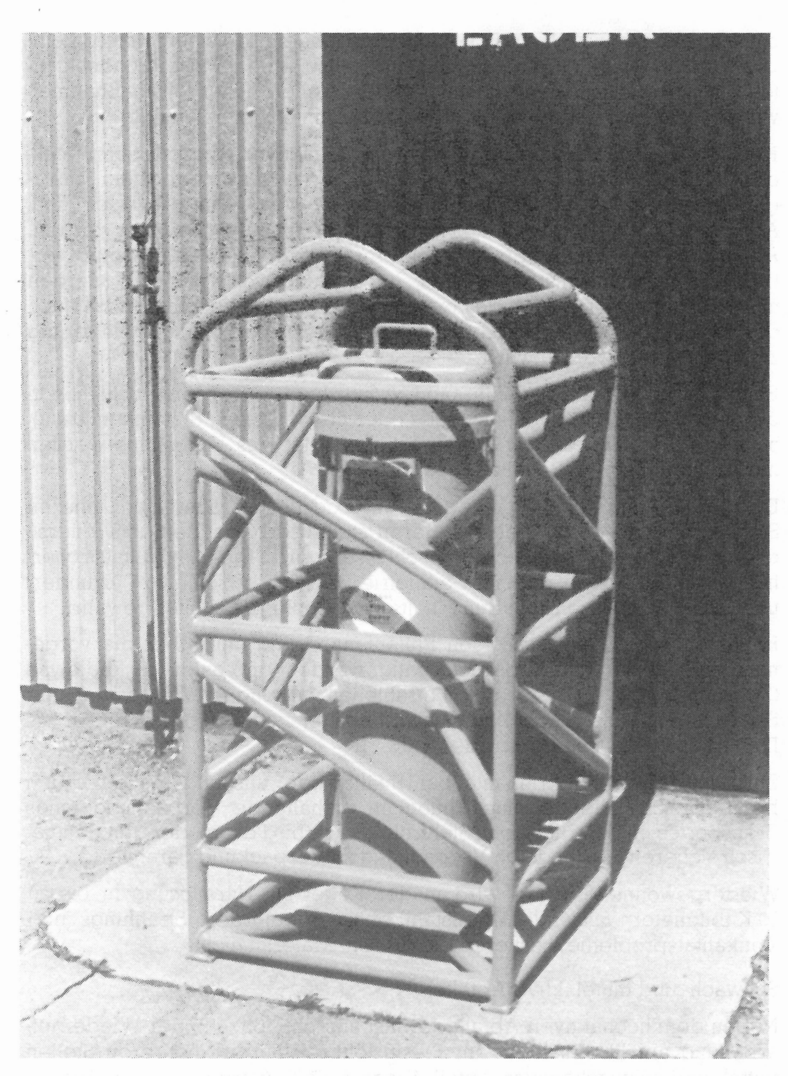
Wiedergewonnenes Uran wird in der Regel als Nitratlösung in bis zu 10 Kubikmetern fassenden Edelstahlbehältern befördert. Strahlungs- und Kritikalitätsprobleme existieren bei diesem Material nicht.

Schwach- und mittelaktive Abfälle:

Neben dem hochaktiven Abfall, der fast ausschließlich in der Wiederaufarbeitung anfällt, entstehen im Brennstoffkreislauf an mehreren Stellen mittel- und schwachaktiver Abfall. Diese Abfälle wurden bis zum Auslaufen der Genehmigung im Jahr 1978 zum Versuchsendlager in die Schachtanlage Asse II bei Wolfenbüttel transportiert und dort eingelagert.

Die Genehmigungsbedingungen und die technischen Einrichtungen der Schachtanlage sind beim Aufbau des Transportsystems für die genannten Abfälle bestimmend gewesen. Bei der Transportabwicklung wird unterschieden nach schwachaktiven und mittelaktiven Transporten [2]:

— Schwachaktiv
  Fässer mit einer Oberflächendosisleistung unter 1 rem/h und einer Aktivität bis 5 Ci/Faß



*Transportverpackung für Plutonium* Foto: Alkem

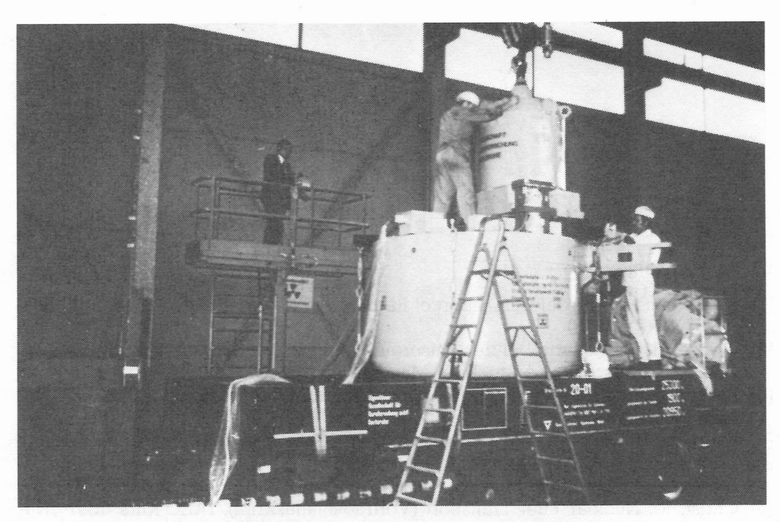
— Mittelaktiv
  Fässer mit einer Oberflächendosisleistung über 1 rem/h und einer Aktivität über 5 Ci/Faß.

Als Verpackung genügen bei schwachaktiven Transporten Blechtrommeln, Rollsicken- oder Rollreifenfässer mit einem Fassungsvermögen von 200 bzw. 400 Litern. Jeweils 14 dieser Fässer wurden in Bahncontainern zum Endlager Asse gebracht.

Bei mittelaktiven Transporten mit Oberflächendosisleistungen von weniger als 20 rem/h am Faß werden Betonbehälter verwendet, die jeweils ein Abfallfaß aufnehmen und gemeinsam mit diesem transportiert und eingelagert werden.

Für höhere Dosisleistungen dieser Kategorie wurden mehrfach verwendbare Einzel- und Sammeltransportbehälter entwickelt, die 7 Abfallfässer aufnehmen können. Letztere können jedoch wegen ihrer Größe und ihres Gewichtes nicht unter Tage gebracht werden. Die Fässer müssen daher in Einzelbehälter umgeladen und zur Einlagerstation gebracht werden.

Der Betrieb eines großen Kernkraftwerks vom Biblis-Typ verursacht jährlich zwischen 500 und 600 m³ schwach und mittelaktiven verfestigten Abfall, wovon etwa ein Drittel beim Kraftwerk selbst, zwei Drittel bei der Aufarbeitung des abgebrannten Brennstoffs anfallen. Welcher Anteil davon langfristig über Straße und Schiene zu transportieren ist, wird weitgehend davon abhängen, ob Wiederaufarbeitung und Abfallagerung integriert werden können.



*Umladen von mittelaktivem Abfall in Einzeltransportbehälter* Foto: KfK

Literatur zu Kapitel 5

[1] Regulations for the Safe Transport of Radioactive Materials. IAEA, Vienna (1961), (1964), (1967), (1973)
[2] Keese, H.: Transporte bei der Entsorgung nuklearer Anlagen. (Vortrag) Symposium Entsorgung der Kerntechnik. Mainz 1976
[3] Zur friedlichen Nutzung der Kernenergie. Eine Dokumentation der Bundesregierung. Bonn 1977
[4] Paschen, H. (Studienleiter): Konsequenzen des großtechnischen Einsatzes der Kernenergie in der Bundesrepublik Deutschland (Kurzfassung). Kernforschungszentrum Karlsruhe 1978
[5] Christ, R.: Nuclear Fuel Transport (Vortragsmanuskript). IAEO-Kurs über „Nuclear Power Project Planning and Implementation". Karlsruhe 1975

# 6. Wiederaufarbeitung

Kernbrennstoffe können nicht so lange im Reaktor bleiben, bis sie völlig abgebrannt sind, da durch die Kernspaltung nicht nur Spaltstoff verbraucht wird, sondern auch Spaltprodukte entstehen, die durch Neutroneneinfang die Kettenreaktion zunehmend behindern und schließlich sogar ganz zum Erliegen bringen können.

Die Aufgaben der Wiederaufarbeitung sind einerseits die Rückgewinnung der noch nicht verbrauchten Spalt- und Brutstoffe, andererseits die Abtrennung der radioaktiven Spaltprodukte.

Die hochreinen wiedergewonnenen Wertstoffe werden zur Herstellung neuen Kernbrennstoffs in den Kreislauf zurückgeführt, nur die abgetrennten Spaltprodukte gelangen nach ihrer Verfestigung als radioaktiver Abfall ins Endlager. Somit stellt sich die Wiederaufarbeitung als wesentliches Bindeglied zwischen dem Versorgungssektor und dem Entsorgungssektor des geschlossenen Brennstoffkreislaufs dar.

Die wirtschaftliche Bedeutung der Wiederaufarbeitung liegt in der erneuten Nutzbarmachung der noch nicht verbrauchten Wertstoffe Uran und Plutonium (Rückgewinnungsmotiv). Der wesentliche sicherheitstechnische Aspekt ist darin zu sehen, daß die durch den Aufarbeitungsprozeß abgetrennten radioaktiven Spaltprodukte nach deren Verfestigung und Endlagerung langfristig ein geringeres Gefährdungspotential aufweisen als die Endlagerung nicht aufgearbeiteter Brennelemente (Entsorgungsmotiv der Wiederaufarbeitung).

Eine Sonderstellung nimmt das durch Neutroneneinfang des Uran-238 im Reaktor entstandene Plutonium ein (s.d.Kap. 1; S. 8). Es ist einerseits ein Spaltstoff, der durch Rückführung in Reaktoren genutzt werden kann, andererseits ist das neu entstandene Element ein $\alpha$-Strahler mit sehr langer Halbwertzeit und hoher Radiotoxizität. Hinzu kommt, daß Plutonium aus Leistungsreaktoren unter bestimmten, technisch allerdings sehr schwer erreichbaren Bedingungen als Kernsprengstoff mißbraucht werden könnte. Diese Eigenschaften haben zu einer kontrovers geführten Diskussion geführt, wobei die eine Seite den Standpunkt vertritt: keine Aufarbeitung, um die Gewinnung des gereinigten Plutoniums zu verhindern. Statt dessen solle der abgebrannte Brennstoff direkt ins Endlager gebracht werden. Die Gegenseite argumentiert für die Aufarbeitung: Ein Verzicht bedeute eine unnötig hohe Inanspruchnahme der Uranreserven; das zwangsläufig mit nicht aufgearbeiteten Brennelementen ins Endlager verbrachte Plutonium erhöhe das Langzeitrisiko einer Endlagerstätte und lasse diese sogar mit der Zeit zu einem relativ leicht zugänglichen Plutoniumlager werden. Demgegenüber sei die möglichst rasche Rückführung und Verbrennung des Plutoniums in Reaktoren die sicherste Methode zu dessen Beseitigung.

## 6.1 Technische Stufen der Wiederaufarbeitung

Unabhängig von den Besonderheiten, die der Brennstoff der unterschiedlichen Reaktortypen aufweist, läuft dessen Aufarbeitung im Prinzip in den folgenden Stufen ab:

— Annahme und Zwischenlagerung
— Brennstofffreilegung und Auflösung
— Extraktion der Wertstoffe (Spalt- und Brutstoffe)
— Endreinigung der Wertstoffe

Gegebenenfalls kann sich an die Endreinigung des in flüssiger Form anfallenden Urans und Plutoniums noch in der Wiederaufbereitungsanlage deren Konversion in ein festes Produkt anschließen.

Die Einrichtung eines Brennelementlagers ist erforderlich, um die in Einzeltransporten eintreffenden Brennstoffmengen zu sammeln, bis eine genügend große Charge für eine Aufarbeitungskampagne zusammengestellt werden kann. Das Lager muß ausreichend Pufferkapazität haben, um auch bei unregelmäßiger Anlieferung die gleichbleibende Auslastung der Anlage zu sichern.

Darüber hinaus ist bei hochabgebranntem Brennstoff vor Beginn der Wiederaufarbeitung eine bestimmte Abklingzeit erforderlich, während der einige hochradioaktive Spaltprodukte und Transurane zerfallen, die sonst zu Störungen des Aufarbeitungsprozesses führen können.

Im Kapitel 4 „Brennelementherstellung" wurde gezeigt, daß der Kernbrennstoff in den Brennstäben dicht eingeschlossen sein muß, um Reaktionen zwischen Kühlmittel und Brennstoff zu vermeiden und den Austritt von radioaktiven Spaltprodukten in das Kühlmittel zu verhindern. Diese Barriere muß jetzt beseitigt werden, um die nachfolgende chemische Auflösung zu ermöglichen: Der Brennstoff muß aufgeschlossen werden. Wegen ihrer betriebstechnischen Vorteile wird heute den naßchemischen Aufarbeitungsverfahren der Vorzug gegeben. Der im vorangegangenen Arbeitsschritt freigelegte feste Brennstoff wird nun mit Salpetersäure aufgelöst. Die Extraktion der Wertstoffe aus der Brennstofflösung wird mit Hilfe des in der chemischen Industrie sehr häufig verwendeten Gegenstromextraktionsverfahrens mit einem organischen Lösungsmittel vorgenommen. Ähnlichen Flüssig/-Flüssig-Extraktionsverfahren sind wir bei der Herstellung des Yellow Cake und bei dessen Feinreinigung vor der Konversion zu Uranhexafluorid bereits begegnet. Die technischen Unterschiede bei der Wiederaufarbeitung ergeben sich daraus, daß die in Lösung befindlichen Wertstoffe durch hochradioaktive Spaltprodukte verunreinigt (kontaminiert) sind. Darüber hinaus sind in der Regel zwei verschiedene Wertstoffe, Uran und Plutonium (Purex-Verfahren) oder Uran und Thorium (Thorex-Verfahren), zu extrahieren und später voneinander zu trennen.

Nach der abschließenden Produktreinigung müssen die Wertstoffe soweit dekontamiert sein, daß sie ohne starke Abschirmung weiter verarbeitet werden können.

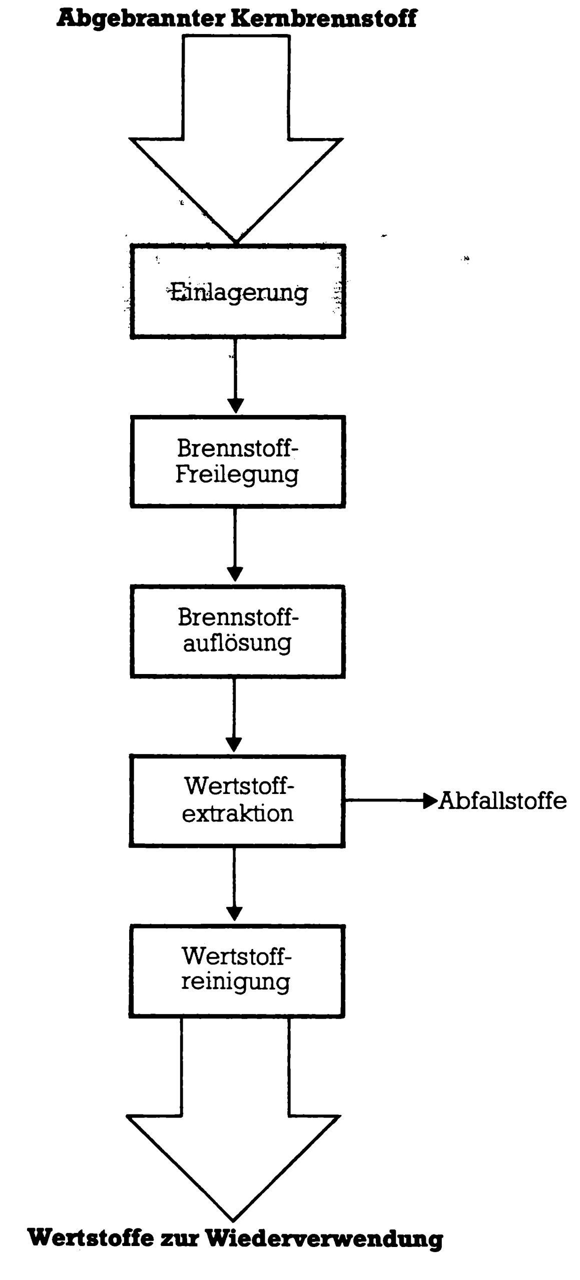



Abb. 16: Technische Stufen der Wiederaufarbeitung

## 6.2 Grundzüge des Purex-Verfahrens

Seinen Namen verdankt das Verfahren den Anfangsbuchstaben der englischen Kurzschreibung seiner Funktionsweise:
„Plutonium-Uranium-Recovery by Extraction".

Im Prinzip ist das Purex-Verfahren eine Form der Lösungsmittelgegenstromextraktion. Als Extraktionsmittel dient ein Phosphorsäureester TBP Tri-n-butyl-phosphat $(C_4H_9O)_3$ PO, das mit 70% Reinstpetroleum (Kerosin) verdünnt ist. Aufgrund dieses Mischungsverhältnisses wird dieses Extraktionsmittel auch kurz TBP-30 genannt.

Bei Gegenwart von Salpetersäure löst das TBP-30 unter Komplexbildung selektiv die Nitrate des U und Pu aus der Brennstofflösung heraus, während die Nitrate der Spaltprodukte in der wässerigen Phase zurückbleiben. Um möglichst hohe Extraktionsraten zu erreichen, müssen die im Gegenstrom zueinander geführten Flüssigkeiten innig miteinander vermengt werden. Da sich TBP und die wäßrige Phase wieder selbsttätig voneinander absetzen, sobald das Gemenge in eine Ruhezone kommt, können jetzt die mit U und Pu beladene organische Phase und die wäßrige Phase, in der die Spaltproduktnitrate zurückgeblieben sind, leicht voneinander getrennt werden (Abb. 17).

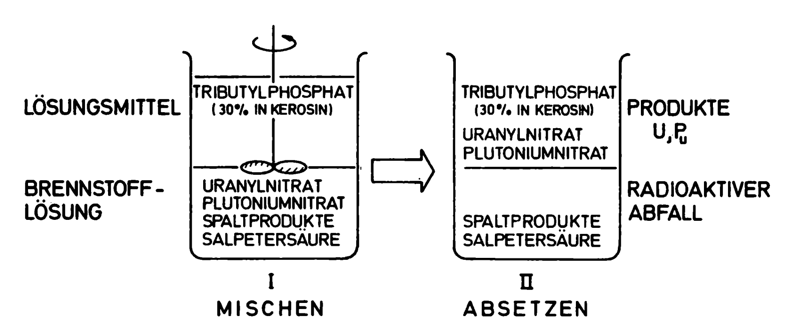



Abb. 17: Prinzip der Uran-Plutonium-Extraktion mit TBP-30

Da der Reinigungs- oder Dekontaminationseffekt einer Extraktionsstufe nicht ausreicht, wird dieser Vorgang wiederholt in Mischapparaten durchgeführt, die hintereinander angeordnet sind.

## 6.3 Wiederaufarbeitung von LWR-Brennstoff

Die Leichtwasserreaktoren stellen heute und sicherlich auch noch bis zum Ende dieses Jahrhunderts das Rückgrat der Kernenergieerzeugung dar. Der Aufarbeitung dieser Brennstoffe kommt daher ganz besondere Bedeutung zu.

In diesem Abschnitt müssen die Aspekte der LWR-Brennstoffaufarbeitung daher breiter behandelt werden, als dies bei den erst zukünftig in größeren Mengen anfallenden Brennstoffen aus Hochtemperaturreaktoren und Brutreaktoren erforderlich ist.

## 6.3.1 Charakteristika des bestrahlten LWR-Brennstoffs

Moderner Druckwasserreaktor-Brennstoff hat während seiner sich über drei bis vier Jahre erstreckenden Nutzung Wärmeenergie in der Größenordnung von etwa 33000 Megawattagen pro Tonne Uran ($MW_{th}d/t$ U) erzeugt. Diesem Abbrand entspricht eine elektrische Energieerzeugung von ca. 11000 $MW_{e}d$ oder 264 Millionen Kilowattstunden (Kwh).

Die Zusammensetzung des Brennstoffs hat sich durch den Abbrand geändert: Statt der ursprünglichen 100% Uran finden sich jetzt im abgebrannten Brennstoff ca. 96% Uran, 3% Spaltprodukte und 1 % Transurane, vornehmlich Plutonium. Näheren Aufschluß über die Zusammensetzung eines typischen DWR-Brennstoffs gibt Tabelle 12.

Tab. 12: Brennstoffzusammensetzung (DWR) in % der Gesamtmenge

Abbrand 33000 MWd/t U

| Isotop | Brennstoff frisch % | Brennstoff abgebrannt % |
|---|---|---|
| U - 235 | 3,3 | 0,81 |
| U - 236 | 0 | 0,41 |
| U - 238 | 96,7 | 94,50 |
| Pu-238 | 0 | 0,02 |
| Pu-239 | 0 | 0,53 |
| Pu-240 | 0 | 0,24 |
| Pu-241 | 0 | 0,11 |
| Pu-242 | 0 | 0,04 |
| Spaltprodukte und sonst. Aktiniden | 0 | 3,34 |

Die im Brennstoff durch die Kernspaltungen aufgebauten Spaltprodukte sind der Grund für die anfänglich hohe Strahlungsintensität und die Wärmeentwicklung des abgebrannten Brennstoffs. Da jedoch hierin eine große Anzahl von kurzlebigen Radioisotopen enthalten sind, klingen die Wärmeleistung und die Radioaktivität des bestrahlten Brennstoffs zunächst ziemlich rasch nach dessen Entnahme aus dem Reaktor ab.

Die etwas über 30 kg Spaltprodukte, die jede Tonne bestrahlter Brennstoff enthält, haben 0,5 Jahre nach der Entladung aus dem Reaktor eine Aktivität von fast 3,7 Millionen Curie; diese sinkt nach einem Jahr Kühlzeit auf knapp 2,1 Millionen Curie, nach einer Abklingzeit von insgesamt 10 Jahren auf 0,3 Millionen Curie ab. Entsprechend sinkt auch die Wärmeleistung des bestrahlten Brennstoffs (Abb. 18).

Diese Eigenschaften des bestrahlten Brennstoffs erfordern eine Mindestabklingzeit von 100 — 200 Tagen im Brennelementbecken des Reaktors, bevor die Brennelemente zur Aufarbeitungsanlage transportiert werden können. Zwangskühlung der Transportbehälter und unverhältnismäßig schwere Abschirmung sind dann nicht mehr erforderlich.

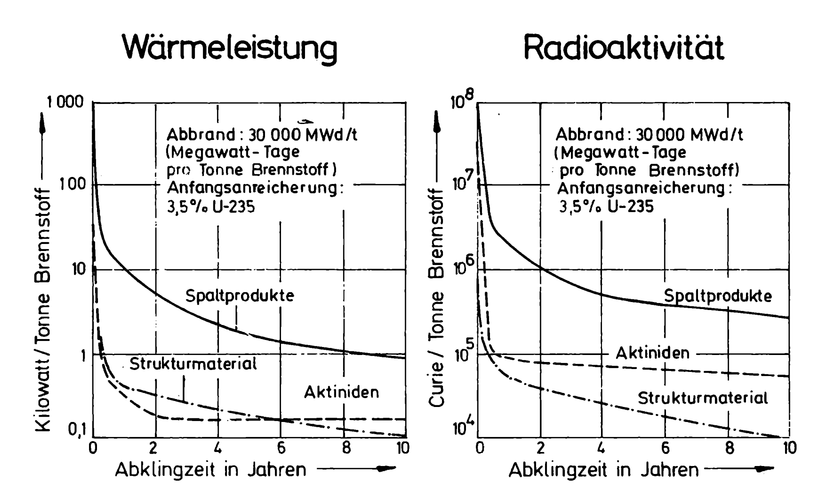



Abb. 18: Wärmeleistung und Aktivität des bestrahlten LWR-Brennstoffs

Die an die Aufarbeitung gelieferten Brennelemente sind Stabbündel von etwa 5 m Länge und Gesamtgewichten von knapp 300 kg (Siedewasser-BE) bis 830 kg (Druckwasser-BE).

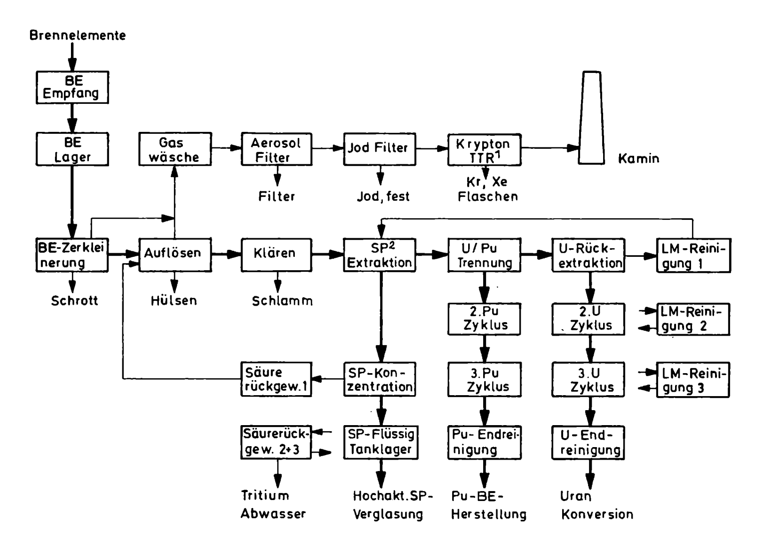
Tab. 13: Brennelementdaten von Leichtwasserreaktoren

| | | SWR[1)] | DWR[2)] |
|---|---|---|---|
| Gesamtlänge | mm | 4470 | 4900 |
| Kantenlänge | mm | 140 | 230 |
| Brennstabdurchmesser | mm | 12,5 | 11 |
| Zahl der Brennstäbe/BE | | 63 | 236 |
| Uran/BE | kg | 185 | 537 |
| Gesamtgewicht/BE | kg | 275 | 830 |
| Hüllrohrwerkstoff | | Zircaloy | Zircaloy |

1) Kernkraftwerk Gundremmingen II 2) Biblis

## 6.3.2 Aufbau und Funktionsbereiche einer Wiederaufarbeitungsanlage für LWR-Brennstoff

Die industrielle Wiederaufarbeitungsanlage ist eine chemische Fabrik, in der die zu verarbeitenden bestrahlten Brennstoffe nacheinander einzelne Verfahrensschritte durchlaufen müssen (Abb. 19). Daher sind auch hier die konventionellen sicherheitstechnischen Vorkehrungen gegen Brand,




1) Tieftemperatur-Rektifikation   2) Spaltprodukte

Abb. 19: Blockschema der Wiederaufarbeitung

Explosion und gegen den unkontrollierten Austritt von Schadstoffen grundsätzlich zu beachten. Bedingt durch die Anwesenheit großer Mengen radioaktiver Stoffe kommt der Erfüllung dieser Grundanforderungen bei der Auslegung einer Aufarbeitungsanlage besondere Bedeutung zu.

Spezielle Maßnahmen, die über den üblichen Rahmen der chemischen Industrie hinausgehen, sind:

1. die Abschirmung gegen $\alpha$-, $\beta$-, $\gamma$- und Neutronenstrahlung
2. Mehrfachumschließung der radioaktiven Stoffe in Doppelbehältern, Auffangtassen
3. Vorkehrungen gegen das Entstehen von kritischen Massen (Kritikalitätskontrolle)
4. Die Betriebsräume der Wiederaufarbeitungsanlage werden zwangsweise be- und entlüftet, um die Ansammlung gas- oder aerosolförmiger radioaktiver Stoffe zu verhindern. Darüber hinaus wird ein leichter Unterdruck erzeugt, um den unkontrollierten Austritt ungefilterter Luft in die Umgebung zu unterbinden.

Ein sicherheitsrelevanter Vorteil der Aufarbeitungstechnik besteht darin, daß bei keinem Prozeßschritt Temperaturen über 130° C oder hohe Drükke erforderlich sind.

Die Struktur der Bedienungsräume, Lagerbecken und Prozeßzellen besteht aus Stahlbeton, der in den meisten Fällen auch als Strahlenabschirmung dient. Aus diesem Grund weist die Konstruktion der hochaktiven Anlagenbereiche Wandstärken bis zu 2 m auf. Mit dem Dekontaminationsgrad des Brennstoffs können die Wandstärken bis auf 0,3 m abnehmen.

Maschinen und mechanische Einrichtungen müssen, soweit sie im heißen Bereich eingesetzt sind, so wartungsfrei wie möglich sein. Für die Durchführung von Wartungsarbeiten hat es sich als vorteilhaft erwiesen, den Gesamtprozeß in kleinere voneinander abgeschottete Zellen aufzuteilen. Es muß dann nur die betreffende Zelle durch Dekontamination für das Wartungspersonal begehbar gemacht werden.

Der Aufbau einer Aufarbeitungsanlage folgt in seiner räumlichen Aufteilung dem Verfahrensablauf. Er wird in Abb. 20 am Beispiel der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) erläutert:

An die Annahmestation links schließt sich das Lagerbecken für die Zwischenlagerung der bestrahlten Brennelemente an. Von hier gelangen die Brennelemente über einen Kanal in den Zellentrakt mit den von links nach rechts aufeinander folgenden Verfahrensstufen des Brennstoffaufschlusses (Head-End), Extraktion von Uran und Plutonium, Reinigung der Produkte Uran und Plutonium in voneinander getrennten Reinigungszyklen, Feinreinigung der Produkte.

## 6.3.3 Die Praxis der LWR-Aufarbeitung

In diesem Abschnitt wird die technische Durchführung der LWR-Aufarbeitung in der Reihenfolge des oben erläuterten Schemas beschrieben. Nach Ankunft des Transportes in der Annahmestation wird der bis zu 120 t schwere Transportbehälter durch Hebeeinrichtungen übernommen und in die Entladestation gebracht. Nach der Außenreinigung von Staub und Straßenschmutz und Entfernung der Stoßkappen wird der Behälter im Lagerbecken unter Wasser geöffnet. Die Brennelemente können jetzt durch einen Manipulatorkran ohne weitere Abschirmmaßnahmen aus dem Behälter entnommen und in das Lagerbecken gebracht werden (Bild WAK). Dort werden die Elemente in Lagergestelle in Einzelpositionen eingesetzt, wobei der Abstand der Positionen zueinander den Anforderungen nach Kritikalitätssicherheit genügen muß. Die notwendige Abschirmung wird durch das Beckenwasser gewährleistet, wenn sich dessen Oberfläche etwa drei Meter über der Oberkante der senkrecht stehenden Elemente befindet. Das Lagerbeckenwasser wird kontinuierlich über Filter und Ionenaustauscherharze geleitet, um Verunreinigungen herauszufiltern. Da sich das Wasser durch die Nachzerfallswärme der Brennelemente aufwärmt, muß für entsprechende Kühlung gesorgt werden.

Die bauliche Struktur des Brennelementlagers, wie auch der gesamte Prozeßtrakt, muß den allgemein an kerntechnische Anlagen gestellten Sicherheitsanforderungen gegenüber Erdbeben, Flugzeugabsturz, Explosion und Sabotage entsprechen.

Frühestens nach Erreichen der Mindestkühlzeit, die einschließlich der Lagerung im Abklingbecken des Kernkraftwerks ein bis eineinhalb Jahre beträgt, kann deren Aufarbeitung beginnen. Vom Lagerbecken werden die Brennelemente fernbedient durch eine Schleuse in die Head-End-Zelle gebracht, in der der mechanische und chemische Aufschluß des Brennstoffs erfolgt.

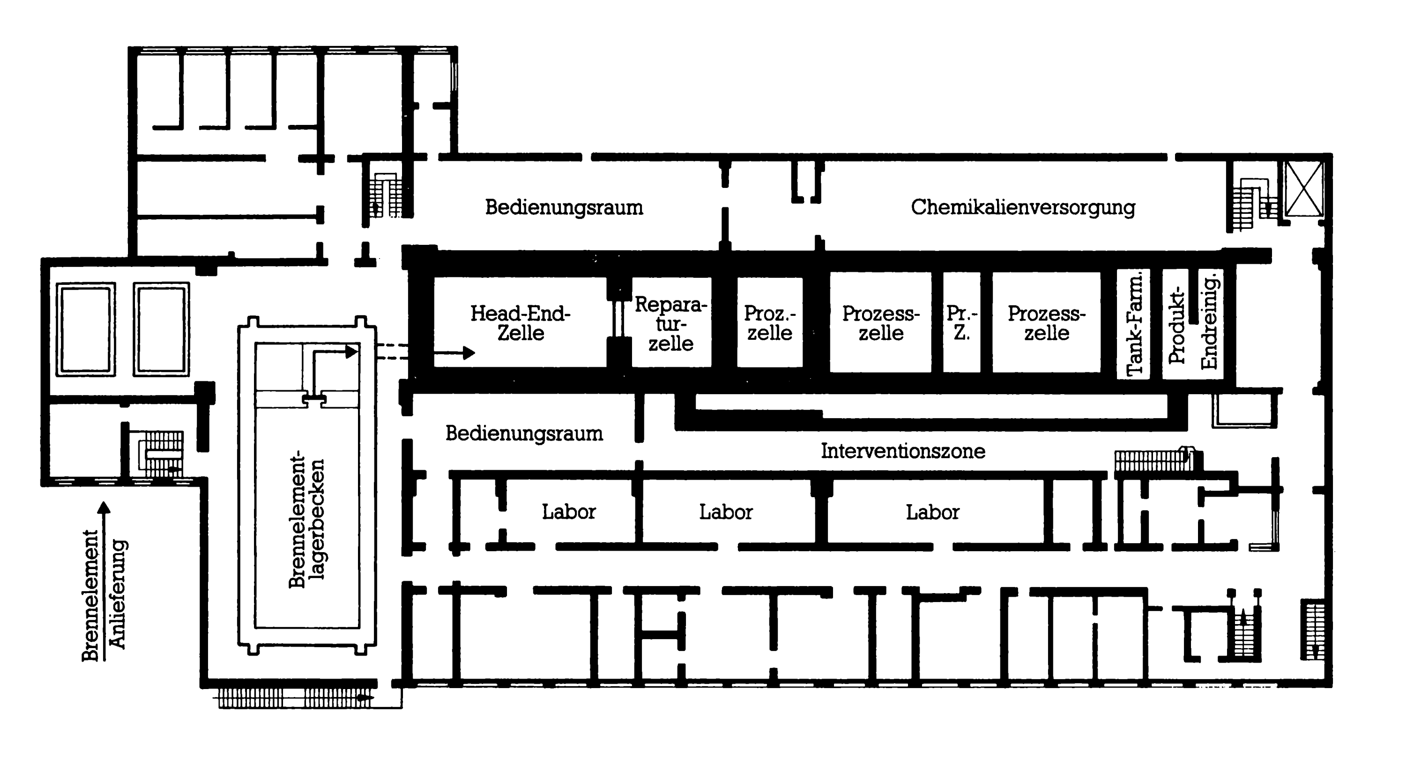
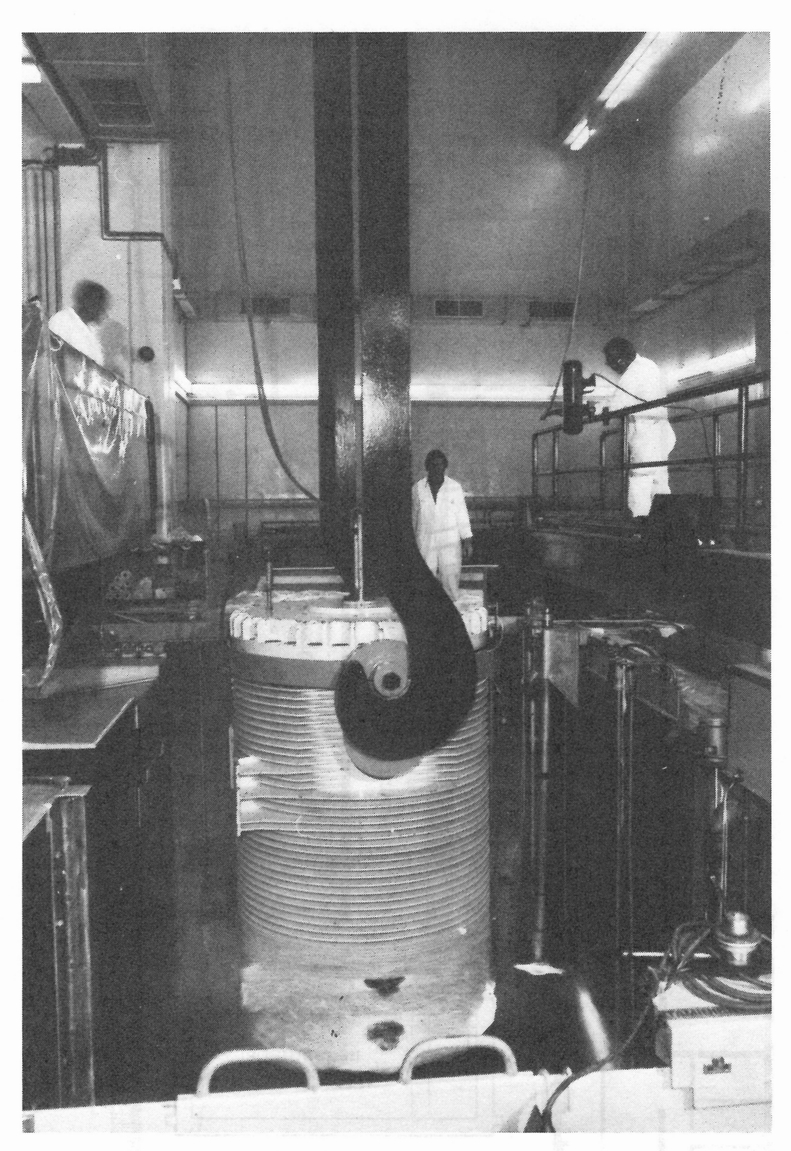



Abb. 20: Hauptgebäude der WAK, Grundriß des 1. Obergeschosses



*Transportbehälter beim Einbringen in das Lagerbecken der WAK*
Foto: WAK

Der mechanische Aufschluß wird durch Zerschneiden der Brennstäbe in etwa 5 cm lange Stücke erreicht. Hierfür werden hydraulisch betriebene Scheren verwendet. Je nach Konstruktion verarbeiten diese Scheren einzelne Brennstäbe (Stabscheren) oder das ganze Brennstabbündel nach Entfernung der Kopf- und Fußstücke (Bündelscheren).

Die kurzen Brennstabstücke fallen unmittelbar in den Auflöser. Nach etwa fünfstündigem Kochen in halbkonzentrierter Salpetersäure ($HNO_3$) ist der ehemals feste Brennstoff aus den Hülsen herausgelöst. In der Lösung befinden sich jetzt Uranylnitrat $UO_2$ $(NO_3)_2$, Plutonium(IV)nitrat $Pu(NO_3)_4$ und die Nitrate von etwa 50 verschiedenen chemischen Elementen, den Spaltprodukten und Aktiniden.

Diese Kombination — Zerschneiden der Hüllrohre und anschließendes Herauslösen des Brennstoffs — wird auch „Shear-leach-Prozeß" genannt. Die Zircaloy-Hülsen werden durch Salpetersäure nicht angegriffen und bleiben als fester Hülsenschrott zurück.

Bereits beim Zerschneiden, jedoch hauptsächlich bei der Brennstoffauflösung, entweichen nitrose Gase, Aerosole und gasförmige Spaltprodukte, die durch die Spülluft in den Abgasstrom getrieben werden.

Die im Head-End anfallenden Produkte sind somit
— fest — Hülsenschrott, BE-Strukturteile
— flüssig — Brennstofflösung
— gasförmig bzw. flüchtig — nitrose Gase, Krypton, Xenon, Jod

Die festen Abfälle werden auf restlichen Spaltstoffgehalt geprüft und in ein Naßlager ausgeschleust. Für die spätere Endlagerung werden diese radioaktiven Abfälle in Beton fixiert.

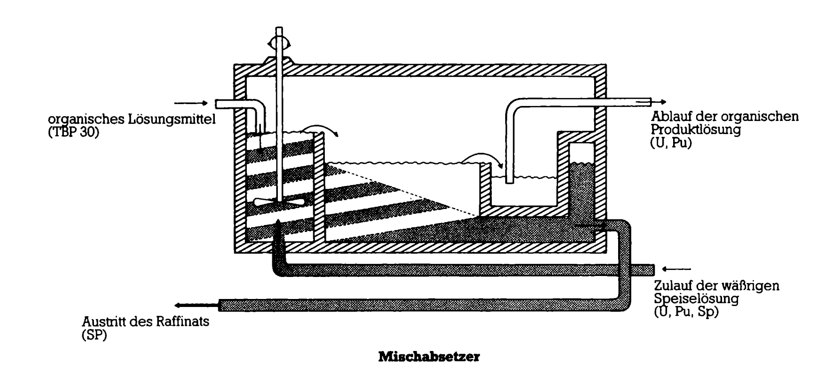
Besondere Bedeutung wird der Abgasreinigung geschenkt. Die nitrosen Gase werden unter Einwirkung von Luft rekombiniert, ausgewaschen und als verdünnte Salpetersäure in den Prozeß zurückgeführt. Jod wird durch Abdestillation aus der Lösesäure in den Abgasstrom getrieben und aus diesem durch Filter aus silberimprägniertem anorganischem Trägermaterial ausgeschieden. Die freigesetzten Edelgase Krypton und Xenon können durch Tieftemperaturrektifikation ausgeschieden werden. Während das nichtaktive Xenon abgegeben werden kann, muß Krypton auf Stahlflaschen gezogen werden. Das Krypton kann in dieser Form in einem Speziallager (Engineered Storage) aufbewahrt werden. Es zerfällt nach etwa 100 Jahren vollständig zu inaktivem Rubidium.

Das restliche gereinigte Abgas kann über den Kamin an die Atmospäre abgegeben werden.

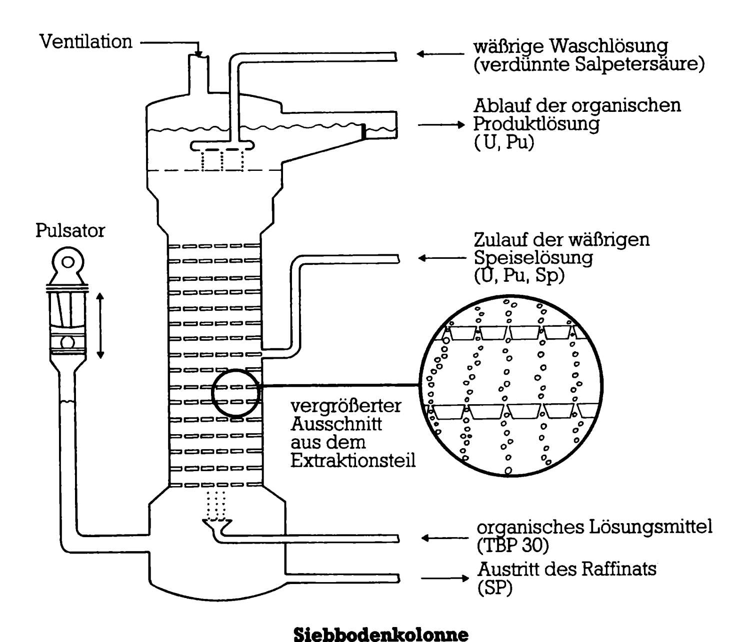
Die Brennstofflösung wird nach Durchlaufen einer Reinigungsstufe, in der mitgeführte Feststoffe abgetrennt werden, homogenisiert und auf ihren Spaltstoffgehalt analysiert. Danach wird die Lösung an ein Pufferlager abgegeben. Von hier aus erfolgt die Einspeisung in den ersten Extraktionszyklus.

Als Extraktionsapparate haben sich bis heute zwei unterschiedliche Bauarten in der Praxis bewährt
der Mischabsetzer (Mixer-Settler) und
die gepulste Siebbodenkolonne.

Beim Mischabsetzer wird das TBP-30 mit der entgegenströmenden Brennstofflösung in einer Mischkammer verrührt. Über ein Wehr strömt das Gemenge in eine Absetzkammer, in der sich das jetzt mit U und Pu beladene TBP von der wässerigen Phase selbsttätig trennt, aufschwimmt und abgezogen werden kann. Da der Reinigungseffekt einer Mixer-Settler-Ein-




**Mischabsetzer**




**Siebbodenkolonne**

 Abb. 21: Extraktionsapparate

heit nicht ausreicht, muß der Vorgang in hintereinander angeordneten gleichen Schritten wiederholt werden (Abb. 21).

Bei der Siebbodenkolonne steigt das unten eingespeiste TBP-30 in einem Zylinder nach oben, während ihm die anorganische Brennstofflösung entgegenströmt. Der TBP-Strom muß auf seinem Weg durch die Kolonne eine Reihe von Siebböden passieren und wird dabei in feine Tröpfchen aufgespalten. Dieser Zerteilungseffekt wird durch das Pulsieren der Flüssigkeitssäule in der Kolonne noch gefördert. Wenn das TBP den Kopf der Kolonne erreicht, hat es durch den Kontakt mit der Brennstofflösung Uran und Plutonium extrahiert und kann nach der Entmischung abgezogen und in die nächste Kolonne gefördert werden (Abb. 21).

Praktische Erfahrungen haben dazu geführt, daß man heute für die apparative Ausstattung des ersten hochaktiven Extraktionszyklus die Pulskolonnen den Mixer-Settlern vorzieht.

Die Extraktion nach dem Purex-Verfahren erfolgt in drei Schritten[1]:

Im ersten, hochaktiven Extraktionszyklus wird ein wesentlicher Teil der Spaltprodukte abgetrennt und nachfolgend die Separierung von Uran und Plutonium erreicht. Die voneinander getrennten Wertstoffströme durchlaufen danach den zweiten und dritten Uranzyklus beziehungsweise den zweiten und dritten Plutoniumzyklus.

Der erste Extraktionszyklus besteht aus fünf Pulskolonnen. Die beiden ersten Kolonnen dienen der Reinigung des Produktstromes. Die gereinigte organische mit U und Pu beladene Lösung gelangt nun in die dritte Trenn- oder Verteilungskolonne. Durch Zugabe eines Reduktionsmittels wird das Pu, das in 4- und 6wertiger Form im TBP gelöst ist, zur 3wertigen Form reduziert. Da 3wertiges Pu in TBP praktisch nicht mehr löslich ist, kehrt es in die wässerige Phase zurück.

In der vierten (Pu)-Kolonne werden im Plutonium mitgeführte Uranreste durch TBP ausgewaschen.

In der fünften (Rückextraktions)-Kolonne wird das Uran durch Zugabe von stark verdünnter Salpetersäure in die wässerige Phase zurückextrahiert.

Die zwischenzeitlich aufkonzentrierte Uranproduktlösung wird nun in zwei aufeinander folgenden identischen Reinigungszyklen weiter dekontaminiert. Beide Zyklen sind mit je zwei Mischabsetzerbatterien für Extraktion bzw. Reduktion ausgerüstet.

Abschließend erfolgt eine Endreinigung über Silikagel-Kolonnen.

Die restliche $\beta$- und $\gamma$-Aktivität des aufgearbeiteten Urans liegt jetzt in der Größenordnung von Natururan.

Die weitere Reinigung des Plutoniums wird wieder mit Hilfe des TBP durchgeführt. Da das aus dem ersten Extraktionszyklus stammende 3wertige Pu in TBP nicht löslich ist, wird es zunächst aufoxidiert, dann in den 2. Pu-Zyklus eingespeist. Dieser Zyklus arbeitet wiederum mit drei Pulskolonnen mit den Funktionen Extraktion, Rückextraktion, Waschen. Dieser Prozeß wird im dritten (identischen) Pu-Zyklus noch einmal wiederholt.

---

1) Im folgenden wird weitgehend auf [7] Bezug genommen.

Sowohl Plutonium als auch Uran fallen als wässerige Lösungen ihrer Nitrate an. Die konzentrierte Uranylnitratlösung enthält 400 — 500 Gramm Uran pro Liter, die gereinigte Plutoniumnitratlösung wird durch Eindampfen auf eine Konzentration von etwa 30 Gramm Plutonium pro Liter gebracht.

Die anfallenden hochaktiven Flüssigabfälle des 1. Extraktionszyklus werden in Destillations-Kolonnen aufkonzentriert, um das notwendige Lagervolumen zu reduzieren. Bei diesem Eindampfungsprozeß kann ein erheblicher Anteil der Salpetersäure zurückgewonnen und wieder dem Prozeß zugeführt werden.

Die aufkonzentrierte Spaltproduktlösung enthält über 99 % der gelösten Spaltprodukte und hat eine spezifische Aktivität von rund 1000 Curie pro Liter. Die durch diese Aktivität freiwerdende Zerfallswärme muß durch ein Kühlsystem aus den Lagertanks abgeführt werden. Nach etwa fünfjähriger Zwischenlagerung kann die Weiterverarbeitung zu endlagerfähigen Festkörpern erfolgen (s. Kap.7 „Behandlung und Lagerung radioaktiver Abfälle").

Wie die Salpetersäure wird auch das organische Lösungsmittel nach Durchlaufen einer Lösungsmittelwäsche wieder in den Prozeß zurückgeführt.

Die Funktion der Wiederaufarbeitungsanlage als Bindeglied zwischen dem Entsorgungs- und Versorgungssektor des Brennstoffkreislaufs wird ganz deutlich, wenn sich die Weiterverarbeitung der Uran- bzw. Plutoniumlösung zu neuem Brennstoff unmittelbar an den Wiederaufarbeitungsprozeß anschließt.

Für die Weiterbehandlung des Uranylnitrates werden je nach dem weiteren Verwendungszweck zwei Wege beschritten:

— Soll das Uran wieder angereichert werden, kann es mit Hilfe von Fluorwasserstoff (HF) zu Urantretrafluorid ($UF_4$), der Vorstufe des für die Anreicherung erforderlichen $UF_6$, konvertiert werden.
— Andernfalls ist die Umwandlung des Uranylnitrates nach dem in Kapitel 4.2.4 beschriebenen AUC-Verfahren zu Urandioxid $UO_2$ möglich, wenn es unmittelbar zu Schwerwasserreaktorbrennstoff oder zu Uran/Plutonium-Mischbrennstoff verarbeitet werden soll.

Auch das Plutoniumnitrat muß vor seiner Verwendung als Brennstoff in die Form des Plutoniumoxids ($PuO_2$) umgewandelt werden.

Bei der Planung der deutschen Wiederaufarbeitungsanlagen werden die Herstellung von U/Pu-Mischoxiden und die Herstellung von Mischoxidbrennstäben als integraler Bestandteil der Wiederaufarbeitungsanlage betrachtet. In ausländischen Anlagen erfolgt die Weiterverarbeitung des Plutoniums vorwiegend räumlich getrennt.

Das als Grundlage für die Aufarbeitung genutzte Purex-Verfahren hat sich seit dem Beginn der 50er Jahre durchgesetzt. Bis gegen Ende der 70er Jahre wurden weltweit einige 100000 t Uran aus militärischen Reaktoren, mehr als 30000 t Uran aus den Magnox-Elementen der gasgekühlten Leistungsreaktoren Englands und Frankreichs und ca. 650 t aus Leichtwasserreaktoren aufgearbeitet. [6]

In den großen westeuropäischen Anlagen von Windscale (GB) mit 2000 jato[1]) und Cap de la Hague (F) mit 600 jato, die beide ursprünglich nur für die Aufarbeitung von Magnoxbrennstoff ausgelegt waren, werden heute auch LWR-Brennstoffe aufgearbeitet. In der Bundesrepublik Deutschland wird die Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) betrieben, die einen Nenndurchsatz von 40 Tonnen Uranoxid pro Jahr hat und LWR-Brennstoff mit bis zu 39000 MWd/t U verarbeitet hat.

Eine Zusammenstellung der europäischen Aufarbeitungsanlagen zeigt Tabelle 14.

Tab. 14: Wiederaufarbeitungsanlagen in Westeuropa (Stand 1980)

| Anlage | Land | Durchsatz (t U/Tag) | Aufschluß | Extraktions-verfahren |
|---|---|---|---|---|
| Windscale II | GB | 7 | shear-leach chem. | Purex |
| Dounreay | GB | 0,03 | | Purex |
| Cap de la Hague | F | 3—4 | Shear-leach chem. | Purex |
| Marcoule | F | 1—2 | chem. | Purex |
| Eurochemic (außer Betrieb) | B | (0,3) | chem. | Purex |
| Eurex | I | ? | chem. shear-leach | Purex |
| WAK | D | 0,175 | shear-leach | Purex |

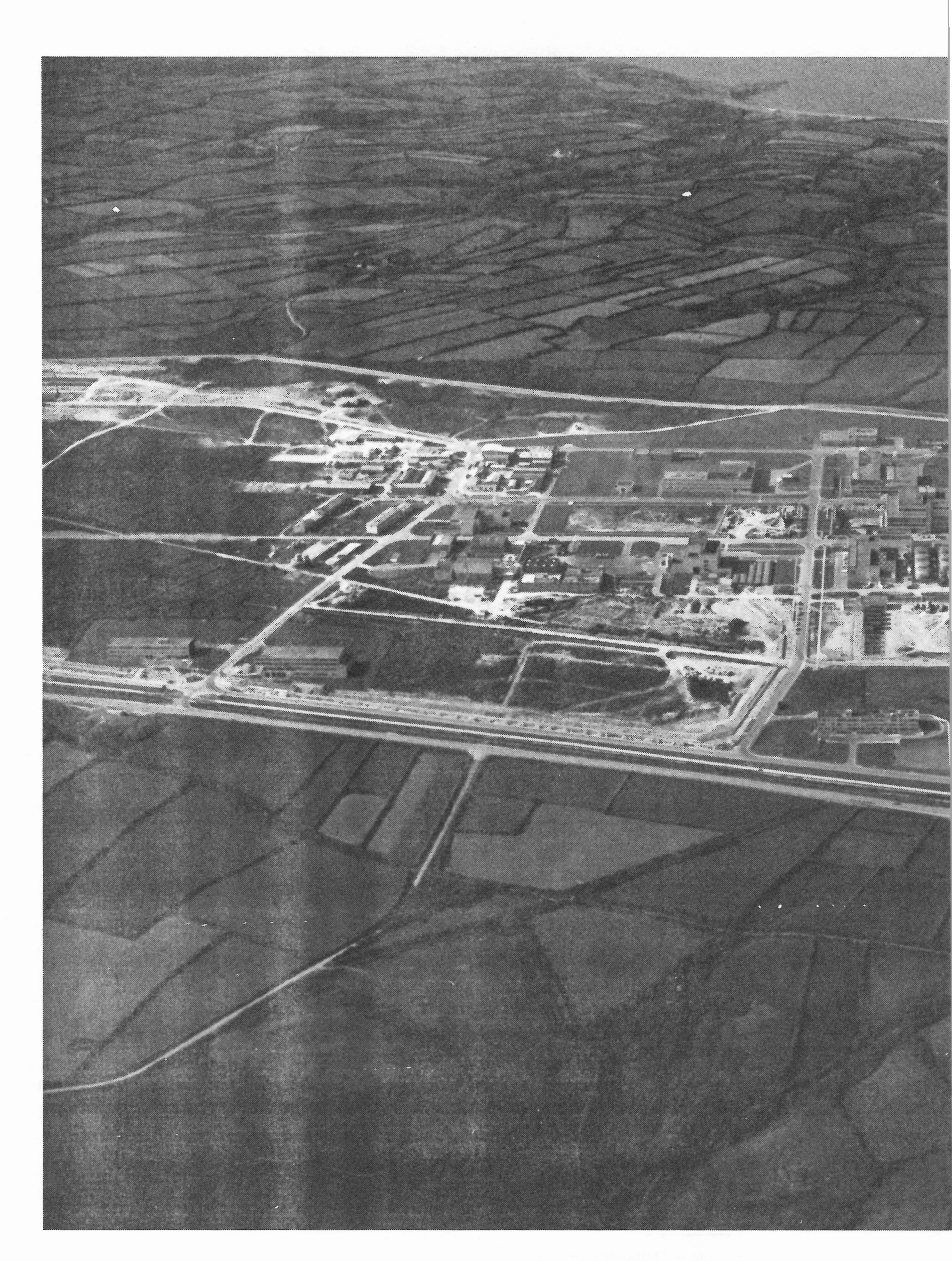
## 6.3.4 Wiederaufarbeitungssituation in der Bundesrepublik Deutschland

Der Wiederaufarbeitungsbedarf der Bundesrepublik Deutschland wird sich entsprechend dem Zubau der Kernenergieleistung entwickeln. Entscheidend für den mengenmäßigen Anfall von abgebrannten Kernbrennstoffen bis zur Jahrhundertwende wird die installierte LWR-Kapazität sein. Als Grundlage der Bedarfsschätzung wird angenommen, daß je 1000 Megawattjahre elektrische Energieerzeugung (1000 $MW_e \cdot a$) 25—30 Tonnen Kernbrennstoff aus den Leichtwasserreaktoren anfallen.

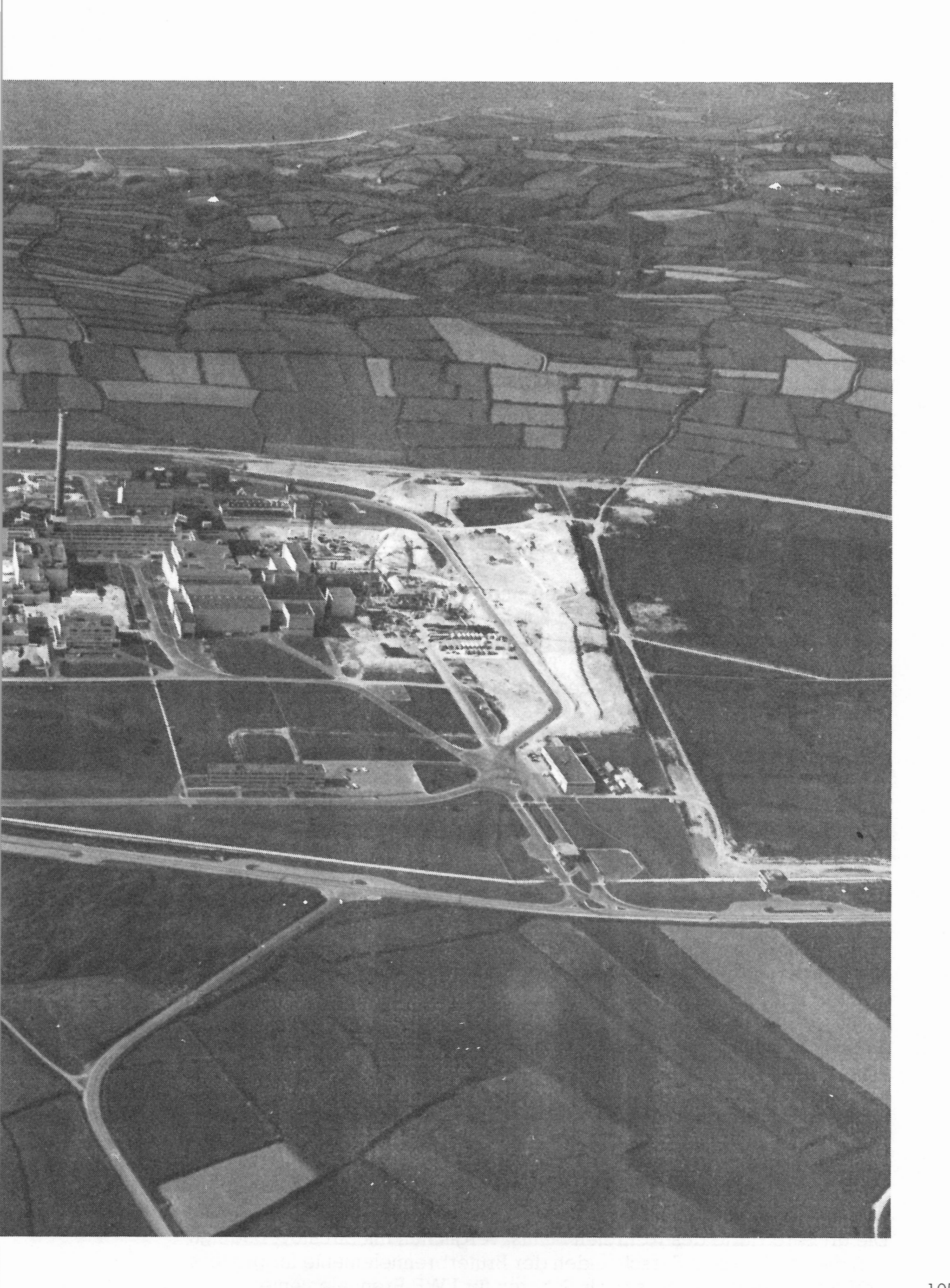
Bis Ende 1979 haben die deutschen LWR-Kernkraftwerke rund 23200 $MW_e \cdot a$ elektrische Energie erzeugt. Hierbei sind ungefähr 700 Tonnen abgebrannter Brennstoff angefallen, dessen Aufarbeitung im wesentlichen durch Verträge mit der WAK und der französischen Cogema[2]) sichergestellt wurde [11].

1) jato = Jahrestonne

2) Cogema = Compagnie Générale des Matières Nucléaires



 *Anlage Cap de la Hague* Foto: CEA-Perceval



Auf der Grundlage einer niedrigen Prognose für die Kernenergieentwicklung in der Bundesrepublik Deutschland wurde der zukünftige Anfall von abgebranntem LWR-Brennstoff in einer Studie des Kernforschungszentrums Karlsruhe berechnet [3]. Danach steigt die jährlich zu erwartende Brennstoffmenge von ca. 154 t Uran (t U) im Jahr 1980 auf knapp 1100 t U im Jahr 2000. Durch weitere Verträge mit der Cogema, die die Aufarbeitungsanlage von Cap de la Hague betreibt, werden zusätzlich rd. 2000 t U nach Frankreich gegeben werden können. Damit ist der Aufarbeitungsbedarf bis etwa 1986 gesichert. Nach diesem Zeitraum müssen die abgebrannten Brennstoffe gelagert werden. Dies wird voraussichtlich sowohl in den Kernkraftwerken selbst und in noch zu errichtenden regionalen Zwischenlagern geschehen müssen (s. d. 7.3 und 7.5).

Die Lagerdauer dieser Brennstoffe wird vermutlich allein davon abhängen, wann eine deutsche Aufarbeitungsanlage in Betrieb gehen kann, da angesichts des rapide steigenden französischen Aufarbeitungsbedarfs die Kapazität der Anlage Cap de la Hague voll ausgelastet sein wird.

## 6.4 Wiederaufarbeitung von Brutreaktorbrennstoff

Die Brennelemente der Brutreaktoren sind wie die der Leichtwasserreaktoren vom Stabbündeltyp. Die etwa 2 m bis 2,50 m langen Brennstäbe tragen jedoch nur im mittleren Teil Brennstofftabletten mit Plutonium als Spaltstoff. Im oberen und unteren Teil des Brennstabs, je ca. 0,5 m lang, liegen spaltstofffreie $UO_2$-Tabletten, die den oberen und unteren axialen Brutmantel bilden. Je nach Auslegung sind 91 bis 325 dieser Brennstäbe zu einem Brennelementbündel zusammengefaßt. Im Reaktor sind diese Brennelemente zu einer inneren Zone angeordnet, um die herum ähnlich gebaute Brutelemente gestellt werden, deren Stäbe jedoch nur spaltstofffreie $UO_2$-Tabletten enthalten. Diese Brutelemente bilden den radialen Brutmantel. In den radialen und axialen Brutmänteln sowie im Uran der Kernzone wird Plutonium erbrütet,

n + U238 → U239 → Np239 → Pu239 (s. d. S. 8)

das wieder als Spaltstoff zur Fertigung neuer Brennelemente dient. Dazu müssen die Brenn- und Brutelemente der Brutreaktoren jedoch zunächst wiederaufgearbeitet werden.

Aufgrund der bestehenden Ähnlichkeiten der Brennelemente aus Brutreaktoren mit den LWR-Brennelementen kann bei der Wiederaufarbeitung im wesentlichen ebenso verfahren werden wie bei der Aufarbeitung von LWR-Brennstoff. Auf Unterschiede wird im folgenden hingewiesen.

Zunächst werden die Brennelemente für den mechanischen Aufschluß zerschnitten. Hier macht sich der härtere Hüllwerkstoff der Brennstäbe bemerkbar. Bei den Brutreaktorbrennstäben wird nicht Zircaloy wie bei den LWR-Brennstäben, sondern rostfreier Stahl als Hüllmaterial verwendet.

Die größere Härte des rostfreien Stahls, verglichen mit Zircaloy, bedingt, daß die Scheren zum Zerschneiden der Brüterbrennelemente für größere Kräfte ausgelegt sein müssen als Scheren für LWR-Brennelemente.

Auf das mechanische Zerkleinern folgt der chemische Aufschluß, das Auflösen des Brennstoffs in Salpetersäure. Falls bei defekten Brennstäben das Kühlmittel Natrium durch Hüllrohrfehlstellen in das Innere der Brennstäbe eingedrungen ist, kann es zu störenden Reaktionen mit der Salpetersäure im Auflöser kommen.

Bei der Auflösung sind die Lösungseigenschaften des Brennstoffs wichtig. Der Brennstoff enthält zwar keine anderen Bestandteile als der bestrahlte LWR-Brennstoff, er wurde aber aus einer Mischung von $UO_2$- und $PuO_2$-Pulver gesintert. Während des Einsatzes im Reaktor hat sich der Brennstoff zu Uran-Plutonium-Mischkristallen umgesetzt, die von Salpetersäure gut gelöst werden. Bei der Aufarbeitung von Brennelementen, die nur kurzfristig im Reaktor eingesetzt worden sind und in denen sich der Brennstoff nicht vollständig zu Mischkristallen umgesetzt hat, kann im Auflöser eine zusätzliche Behandlung notwendig werden, um auch reine Pu-Kristalle aufzulösen.

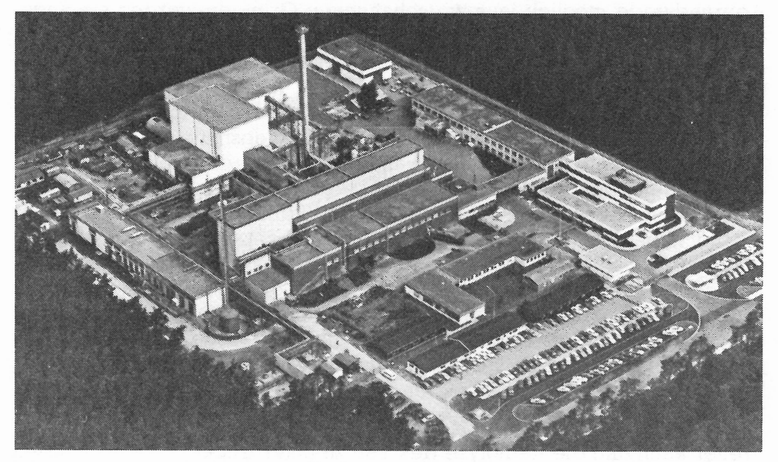
Für Brüterbrennstoff sind maximale Zielabbrandwerte bis zu 100000 MWd/t (mittlere Abbrandwerte von etwa 70000 MWd/t) vorgesehen. Aus neutronen-physikalischen Gründen sind bei Brutreaktoren solche hohen Abbrandwerte möglich, aus wirtschaftlichen Gründen werden sie angestrebt. Der gegenüber LWR-Brennstoff etwa 2—3fach höhere Wert des Abbrandes bedeutet eine etwa um den gleichen Faktor erhöhte Spaltproduktkonzentration, diese wiederum bedingt eine erhöhte spezifische Radioaktivität des wiederaufzuarbeitenden Materials. Im Purex-Prozeß muß dieses Material mit dem organischen Lösungsmittel TBP in innigen Kontakt gebracht werden. Dabei kann das TBP durch Radiolyse geschädigt werden. Die Zersetzungsprodukte des TBP stören den Ablauf des Extraktionsprozesses. Sie führen auch zur Bildung schlammiger Massen („Crud"), die die Extraktionswirksamkeit herabsetzen können. Man plant daher zunächst die Verringerung der spezifischen Radioaktivität durch Mischen des hochabgebrannten Brennstoffs aus den Brennelementen mit Brutmaterial aus den Brutmänteln des Reaktors. Wird diese Mischung in die Extraktionsanlage eingespeist, so ist die hohe spezifische Radioaktivität des Brennstoffs entsprechend verdünnt, der Aktivitätswert der Mischung entspricht dann etwa den Werten, die bei der Aufarbeitung von LWR-Brennstoff erreicht werden.

Weiter kann, um die Radiolyse des TBP zu unterdrücken, die Kontaktzeit von TBP und Brennstofflösung verringert werden. Zentrifugalextraktoren durchmischen die Lösungsmittel im Purex-Prozeß schnell und intensiv und trennen auch danach die Lösungsmittel durch Zentrifugalkraft besonders schnell. Entsprechend der stark verringerten Kontakzeit nimmt die Radiolysewirkung, d.h. die TBP-Zersetzung, ab. Schließlich kann durch geeignete Prozeßführung, d.h. geeignete Wahl und genaue Einhaltung der Prozeßbedingungen, die Crud-Bildung auch bei Verwendung herkömmlicher Apparate (Siebboden-Kolonnen) weitgehend vermieden werden.

Der hohe Plutoniumanteil im Brüter-Brennstoff (etwa 5- bis 8mal soviel wie im LWR-Rezyklierbrennstoff) macht bei der Verarbeitung erhöhten Aufwand erforderlich, insbesondere bei der Kritikalitätsüberwachung bzw. -unterdrückung. Das Prinzip der „geometrischen Sicherheit", d.h. das Verwenden so dünner Rohrleitungen und so flacher Tanks, daß in diesen Gefäßen auf Grund ihrer Abmessungen keine kritischen Plutoniummen-

gen zusammenkommen können, führt zu einer Begrenzung des Mengendurchsatzes. Für kleine Versuchsanlagen ist dieses Prinzip der „geometrischen Sicherheit" geeignet, bei Anlagen mit größerem Mengendurchsatz soll das Prinzip der „Vergiftung" angewendet werden. Stark neutronenabsorbierende Stoffe, sog. „Neutronengifte", werden entweder in genügender Menge dem Plutoniumstrom beigemengt (sog. „homogene Vergiftung") oder um die Gefäße herum bzw. im Innern der Prozeßgefäße angeordnet (sog. „heterogene Vergiftung"), so daß Kritikalität sicher vermieden werden kann.

Zusammenfassend bleibt festzuhalten, daß zur Wiederaufarbeitung von Brutreaktorbrennelementen weitgehend auf Erfahrungen und Entwicklungen der jetzt bekannten Wiederaufarbeitungstechnik für LWR-Brennelemente zurückgegriffen werden kann. Eine Reihe von Weiterentwicklungen sind zwar notwendig, können aber erfolgreich abgeschlossen sein, bis diese Technik im großen Maßstab zur Entsorgung von Brüterkernkraftwerken zur Verfügung stehen muß. Zur Zeit gibt es erst Prototypanlagen, für geringe Jahresdurchsatzmengen, mit denen Betriebserfahrungen gesammelt werden sollen.



*Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK)* Foto: GWK

## 6.5 Wiederaufarbeitung von Hochtemperaturreaktorbrennstoff

Die Brennelemente für Hochtemperaturreaktoren unterscheiden sich so sehr von denen der Leichtwasserreaktoren, daß auch die Technik der Wiederaufarbeitung in einigen Punkten anders gestaltet werden muß.

Das HTR-Brennelement besteht im wesentlichen aus Graphit. Um an den Brennstoff heranzukommen, der in Form beschichteter Teilchen im Innern

der Brennelemente enthalten ist, muß zunächst dieser Graphit entfernt werden. Dazu werden die Brennelemente in einer Mühle zerkleinert und das Mahlgut in einen Wirbelschichtofen gebracht. Mit reinem Sauerstoff verbrennt hier der Graphit bei 750—800° C zu $CO_2$ und CO. Das Abgas ist nicht frei von radioaktiver Kontamination und kann deswegen erst nach entsprechender Reinigung in die Atmosphäre abgegeben werden.

Bei der Verbrennung bleiben die Schwermetallkerne zurück. Sie enthalten Uran und Thorium als Oxid und werden unter Zusatz von Flußsäure in Salpetersäure gelöst. Nach Einstellen der richtigen Säure- und Schwermetallkonzentration findet die Trennung der Spaltprodukte von den Wertstoffen Uran und Thorium durch Flüssig-Flüssig-Extraktion mit TBP statt (sog. „THOREX"-Prozeß), ähnlich wie beim Purex-Prozeß.

Entsprechend der geringen Markteinführung der Hochtemperaturreaktoren ist die Wiederaufarbeitungstechnik für HTR-Brennstoff noch in der Entwicklung.

JUPITER[4]), eine Prototyp-Wiederaufarbeitungsanlage für einen Durchsatz von 2 kg Schwermetall pro Tag, wird seit 1974 in der Kernforschungsanlage Jülich entwickelt. Mit ihr sollen die kugelförmigen Brennelemente eines kleinen Kugelhaufenreaktors der KFA Jülich (AVR-Anlage) mit Abbrandwerten von maximal 100000 MWd/t aufgearbeitet werden. Entwicklungen in den USA sind der Wiederaufarbeitung der großen blockförmigen Brennelemente, wie sie General Atomic verwenden will, gewidmet. Die verschiedenen Entwicklungslinien für HTR-Brennelemente (blockförmige und kugelförmige), HTR-Brennstoff (Uran- und Thoriumoxid oder -Karbid, als Mischung in einem Schwermetallkern oder in getrennten Brennstoff- und Brutstoffkernen) und für die Beschichtung der Teilchen (nur Kohlenstoffschichten oder auch Siliziumkarbid-Schichten) erschweren zur Zeit noch die Entwicklung einer einheitlichen Technik für die HTR-Wiederaufarbeitung. Die Grundlage dafür, der THOREX-Prozeß, ist in den USA erprobt. Die Entwicklungen befassen sich mit der Übertragung in den technischen Maßstab und mit dem Lösen von Randproblemen, die sich dabei ergeben, z. B. der Behandlung der Abgase aus der Graphitverbrennung, um Aerosole, radioaktive Edelgase, Tritium und Jod zurückzuhalten. Ziel dieser Entwicklung ist es, die Technik zur Wiederaufarbeitung und Schließung des Brennstoffkreislaufs verfügbar zu haben, wenn die Markteinführung der Hochtemperaturreaktoren dies erfordert.

4) JUPITER = JUelicher PIlotanlage für Thorium Element Reprocessing

Literatur zu Kapitel 6


[1] Märkte im Wandel, Bd. 8 Energie/Kernenergie, Spiegel Verlag, Hamburg 1979

[2] Sicherheit von Wiederaufarbeitungsanlagen Referate des Fortbildungsseminars der Kerntechnischen Gesellschaft (KTG) am 22./23. 2. 1978, Bonn 1978

[3] Konsequenzen des großtechnischen Einsatzes der Kernenergie in der Bundesrepublik Deutschland Teil II, Fragen der Brennstoffentsorgung, Kernforschungszentrum Karlsruhe KfK 2702, ASA/ZE — 11/78, 1978

[4] Koch, G.: Die chemische Aufarbeitung der bestrahlten Kernbrennstoffe. Chemiker Zeitung, 101. Jahrg. (1977) Nr. 2, S. 64—80

[5] Huppert, K. L.: Die Wiederaufarbeitung bestrahlter Kernbrennstoffe. Schriftenreihe „Kernthemen" des Deutschen Atomforums (DAtF), Bonn 1978

[6] Schüller, W.: Kann man die Kernenergie angesichts des Entsorgungsproblems heute verantworten? Heft Nr. 13 der atw Broschüren „Kernenergie und Umwelt", Düsseldorf/Frankfurt, 1978

[7] Bericht über das in der Bundesrepublik Deutschland geplante Entsorgungszentrum für ausgediente Brennelemente aus Kernkraftwerken 2. ergänzte und überarbeitete Auflage, Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen m.b.H., Hannover 1977

[8] Keller, C., Huppert, K. L.: Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen. Bild der Wissenschaft Nr. 6/1977

[9] Huppert, K. L.: Die Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK) — Aufbau, Betriebsweise und Zielsetzung. Atom und Strom, Folge 1, 1. Januar 1968

[10] Jaeck, W., Pickert, F. K., Zech, H. J.: Wiederaufarbeitung und Rückführung nuklearer Brennstoffe. Programmstudie Nukleare Primärenergieträger, Teil I: Energie durch Kernspaltung, Köln 1978





[11] Nukem Marktbericht. Sonderbericht: Bundesrepublik Deutschland, Juli 1978

# 7. Behandlung und Lagerung radioaktiver Abfälle

Radioaktive Abfälle entstehen durch die Kontamination von Feststoffen oder Flüssigkeiten durch Radionuklide und durch Aktivierung. Je nachdem wieviel Aktivität, gemessen in Curie (Ci), pro Volumeneinheit, ausgedrückt in Kubikmeter ($m^3$), enthalten ist, unterteilt man radioaktive Abfälle nach ihrer spezifischen Aktivität $Ci/m^3$ in

1. schwachaktive Abfälle (LAW)[1] mit weniger als 0,1 $Ci/m^3$ [2]
2. mittelaktive Abfälle (MAW)[1] mit mehr als 0,1—$10^4$ $Ci/m^3$
3. hochaktive Abfälle (HAW)[1] mit mehr als $10^4$ $Ci/m^3$

Weiterhin wird unterschieden nach dem Aggregatzustand in

- flüssige Abfälle
- feste Abfälle
- gasförmige Abfälle

Aufgabe der Abfallbehandlung und Lagerung ist es, dafür zu sorgen, daß die in den Abfällen enthaltenen Radionuklide weder in unzulässig großen Mengen noch in gefährlichen Konzentrationen in die belebte Welt, die Biosphäre, gelangen. Dieses Ziel kann durch drei unterschiedliche Methoden erreicht werden:

- *Verdünnung und Verteilung.* Dieser Weg kann bei radioaktiven Gasen und in Ausnahmefällen auch bei radioaktiven Abwässern beschritten werden, sofern allgemeine Vorschriften, Verordnungen und Gesetze dies zulassen. Durch bestimmte örtliche Gegebenheiten können sich weitere Einschränkungen ergeben.
- *Kurzfristige kontrollierte Lagerung* bis zum Zerfall. Hierfür eignen sich nur Abfälle, die Radionuklide mit kurzen Halbwertszeiten enthalten.
- *Konzentration und Einschluß* müssen überall dann angewendet werden, wenn das radiologische Gefährdungspotential des Abfalls zu hoch und zu langfristig ist. Dieser Weg muß daher in aller Regel bei Abfällen der Kategorien mittel- und hochaktiv beschritten werden. Ziel aller Verfahren, die hierbei angewendet werden, ist es, die primär meist in hoher Verdünnung und Dispersion anfallenden Radionuklidgemische zu konzentrieren und anschließend in eine chemisch und physikalisch stabile feste Form zu bringen.

## 7.1 Herkunft der radioaktiven Abfälle

Radioaktive Abfälle fallen in allen Stufen des Brennstoffkreislaufs an. Weiterhin entsteht überall dort radioaktiver Abfall, wo radioaktive Stoffe in Wissenschaft, Industrie und Medizin verarbeitet und genutzt werden.

Die folgenden Aussagen werden sich auf die Abfälle beschränken, die bei der Versorgung und Entsorgung der Kernkraftwerke entstehen.

---

1) LAW = Low Active Waste
MAW = Medium Active Waste
HAW = High Active Waste

2) 1 Curie = $3{,}7 \times 10^{10}$ Zerfälle pro Sekunde

Beim Uranabbau und der Erzaufbereitung fallen vor allem die Produktionsrückstände aus der Konzentratherstellung als Schlämme an. Sie enthalten die natürlichen radioaktiven Zerfallsprodukte des Urans. Um deren Ausbreitung durch Wind und Wasser zu unterbinden, wird der Abraum in Schlammteichen gelagert, stabilisiert und schließlich begrünt.

Das aus der Grube mit dem Wetterstrom herausgeführte Radon (s. Kap. 2) wird an die Atmosphäre abgegeben.

Bei Konversion und Anreicherung fallen konventionelle chemische Abfälle an, daneben schwachaktive Abfälle, die Spuren von Uran und dessen Tochterprodukten enthalten. Derartige Abfälle werden meist vergraben. In der Bundesrepublik, in der weder Konversions- noch Anreicherungsanlagen betrieben werden, fällt derartiger Waste nicht an. Abgereichertes Uranhexafluorid wird nicht als Abfall angesehen, sondern wird für die spätere Verwendung als Brutstoff in Stahldruckbehältern zwischengelagert.

Bei der Verarbeitung des angereicherten Urans zu Brennelementen finden sich Uranspuren in den Abluftfiltern, in den Chemieabwässern und festen Abfällen. Auch diese Abfälle gehören zum schwachaktiven Waste.

Beim Reaktorbetrieb fällt mittel- und schwachaktiver Waste in allen drei Aggregatzuständen an. Die Abgase enthalten in erster Linie die Edelgasisotope Argon 41, Krypton 85 und Xenon 133 sowie Tritium, radioaktives Jod 129 und Jod 131 sowie die Oxide des Kohlenstoff 14. Nach dem Passieren von Verzögerungsstrecken sowie Absolut- und Adsorptionsfiltern kann das gereinigte Abgas über den Abluftkamin abgegeben werden. Die beaufschlagten Filter gelangen in den Festabfall. Feste und flüssige Abfälle stammen aus der chemischen Aufbereitung und Reinigung des Reaktorkühlwassers. Es handelt sich um Chemieabwässer sowie Kondens- und Leckwässer, die durch Spalt- und Aktivierungsprodukte kontaminiert sind. Derartige Abwässer werden in der Reaktoranlage selbst dekontaminiert. Die anfallenden Schlämme, Filter und Ionentauscherharze gelangen zum Festabfall. Letzterer wird heute schon teilweise durch mobile Aufbereitungsanlagen vor Ort in endlagerfähige Produkte umgewandelt.

Der nach Gesamtaktivität und Menge bedeutendste Abfallproduzent ist die Wiederaufarbeitungsanlage. Es ist überdies die einzige Station im Brennstoffzyklus, in der neben schwach- und mittelaktivem Abfall auch hochaktiver Abfall (HAW) anfällt. Nach Abschluß des Wiederaufarbeitungsprozesses sind über 99 % der nichtflüchtigen radioaktiven Spaltprodukte im hochaktiven flüssigen Waste enthalten, nur ungefähr 1 % fällt gasförmig an.

Grob zusammenfassend soll festgehalten werden:

Schwachaktive Abfälle entstehen in allen Anlagen des Brennstoffkreislaufs. Sie können in flüssiger Form anfallen (z. B. als Abwasser aus Wasch- und Duschräumen der Kontrollbereiche, Laborabwasser u. ä.) oder in fester Form auftreten (z. B. kontaminierte Arbeitsmittel, Papier, Putzwolle, Filterrückstände, Aktivkohle etc.). Schwachaktive Abfälle können im allgemeinen ohne Abschirmung verarbeitet und transportiert werden.

Mittelaktive Abfälle stammen vornehmlich aus Reaktoren und Wiederaufarbeitungsanlagen. Es sind zumeist Rückstände und Konzentrate aus Filter- und Reinigungsanlagen. Bei der Behandlung mittelaktiver Abfälle sind Strahlenschutzmaßnahmen erforderlich.

Hochaktive flüssige Abfälle fallen nur bei der Wiederaufarbeitung abgebrannter Kernbrennstoffe in Form der aufkonzentrierten Spaltproduktlösung an. Die hohe spezifische Aktivität erfordert nicht nur ausreichende Strahlenabschirmung, sondern auch die Abführung der Nachzerfallswärme.

## 7.2 Behandlung radioaktiver Abfälle

Durch die Abfallbehandlung werden radioaktive Schadstoffe aus den Abfallströmen abgetrennt. Die gereinigten dekontaminierten Ströme, z. B. Lösungsmittel, werden entweder in den Prozeß zurückgeführt oder an die Umgebung abgegeben. Als Maß für den erreichten Reinigungsgrad dient der Dekontaminationsfaktor (DF). Dieser ist das Verhältnis der Aktivität des unbehandelten Abfalls zur Aktivität des gereinigten Abfalls:

$$DF = \frac{\text{Ci vorher}}{\text{Ci nachher}}$$

Das Volumen der abgetrennten radioaktiven Schadstoffe ist geringer als das Volumen des noch nicht dekontaminierten Abfalls. Das Maß der Volumenreduktion wird durch den Volumenreduktionsfaktor (VF) ausgedrückt:

$$VF = \frac{m^3 \text{ vorher}}{m^3 \text{ nachher}}$$

Hohe erreichte Volumenreduktion bedeutet geringeren Platzbedarf im Endlager. Bei der Entwicklung der Verfahren zur Abfallbehandlung werden hohe Werte für die beiden genannten Faktoren angestrebt.

Im vorhergehenden Abschnitt wurde gezeigt, daß die Abfallarten des Brennstoffkreislaufs unterschiedlicher Natur sind. Dementsprechend wurden je nach Aktivitätskonzentration, chemischer und physikalischer Beschaffenheit des Abfalls entsprechende Methoden der Behandlung entwickelt.

### 7.2.1 Verfahren zur Behandlung von schwach- und mittelaktiven Abfällen

1. Flüssige Abfälle

Abgesehen von einer Ausnahme (Tritium) ist Wasser selbst nicht radioaktiv, sondern nur die in ihm gelösten oder mitgeschwemmten Stoffe. Für die Dekontamination solcher Abwässer werden drei Wege beschritten:

— Verdampfung
— chemische Fällung
— Ionenaustausch

Bei der Verdampfung des Rohabwassers sammeln sich die Aktivität und inaktive Salze im Verdampferkonzentrat. Bei diesem Verfahren werden DF-Werte von $10^5$—$10^6$ und je nach Salzgehalt VF-Werte von 10—100 erzielt [1]. Die Destillate können daher meist rezykliert oder abgegeben werden.

Die Fällung hat sich bei schwachaktiven, stark verschmutzten Abwässern mit hohen Salzgehalten bewährt. Durch Zugabe entsprechender Chemikalien werden die im Wasser in Lösung befindlichen radioaktiven Stoffe ausgefällt und die entstehenden Schlämme anschließend aufkonzentriert. Die mit diesem Verfahren erreichbaren DF-Werte liegen je nach der chemischen Zusammensetzung des Rohabfalls zwischen 2 und $10^3$ [2].

Ionenaustauschverfahren eignen sich insbesondere für die Dekontamination von reinen Abwässern mit geringen Salzgehalten, wie sie z. B. in Brennelementlagerbecken anfallen. Die mit Aktivität beladenen Ionenaustauscher wandern entweder in den radioaktiven Festabfall oder werden regeneriert, wobei das Eluat als radioaktiver Flüssigabfall weiterbehandelt wird.

Die bei der Dekontamination anfallenden Konzentrate, Prezipitate, Schlämme und Filterhilfsmittel müssen, bevor sie zum Endlager abgegeben werden können, zu einem möglichst auslaugbeständigen Produkt verfestigt werden. Hierbei haben sich bis heute zwei Verfahren, die Bituminierung und die Zementierung, bewährt (Abb. 22). Die Einbettung der Konzentrate in heißes Bitumen erfolgt kontinuierlich in Extrudermaschinen, wobei sich das radioaktive Konzentrat in Partikeln verteilt und restliches Wasser verdampft. Das fertige Produkt wird in Stahlfässer gefüllt, wo man es erkalten läßt. Bitumenprodukte zeigen bessere Auslaugbeständigkeit und geringeres Volumen als entsprechende in Zement gebundene Konzentrate.

Beide Verfahren werden seit Jahren mit gutem Erfolg praktiziert. Im Kernforschungszentrum Karlsruhe wurden z. B. Verdampferkonzentrate aus rd. 50000 $m^3$ Rohabwässern mit insgesamt $5 \times 10^4$ Curie zu 500 $m^3$ Bitumenprodukt verarbeitet [2].

2. Feste Abfälle

Auch bei festen schwach- und mittelaktiven Abfällen wird eine möglichst weitgehende Volumeneinengung und die anschließende Fixierung der kompaktierten Produkte angestrebt.

Die zur Erreichung dieser Ziele angewendeten Methoden hängen davon ab, ob die im Rohabfall enthaltene Aktivität an brennbare oder nicht brennbare Trägersubstanzen gebunden ist:

Brennbare Abfälle werden verascht, nicht brennbare Abfälle werden durch Zerkleinern und Pressen konzentriert.

Etwa 60% aller festen Abfälle aus den Anlagen des Brennstoffkreislaufs sind brennbar. Durch Veraschung kann deren Volumen um den Faktor 80:1 verringert werden. Für die Veraschung werden Öfen mit kerami-

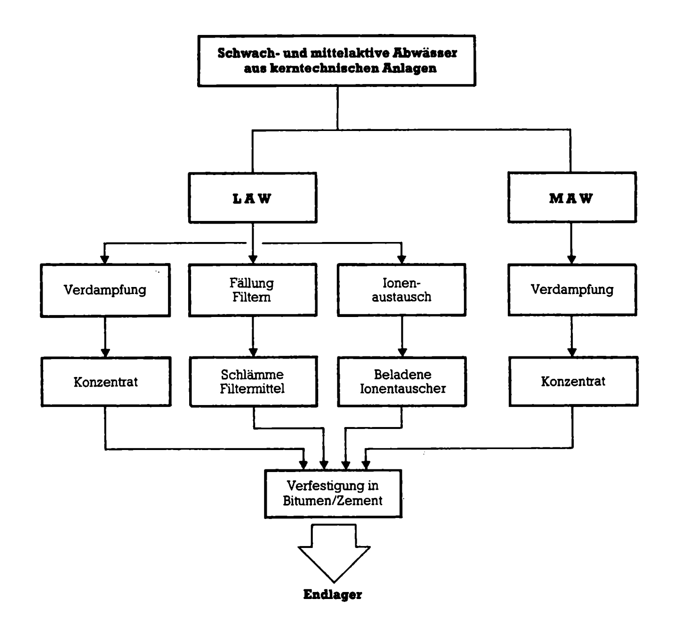



Abb. 22: Aufbereitung flüssiger radioaktiver Abfälle

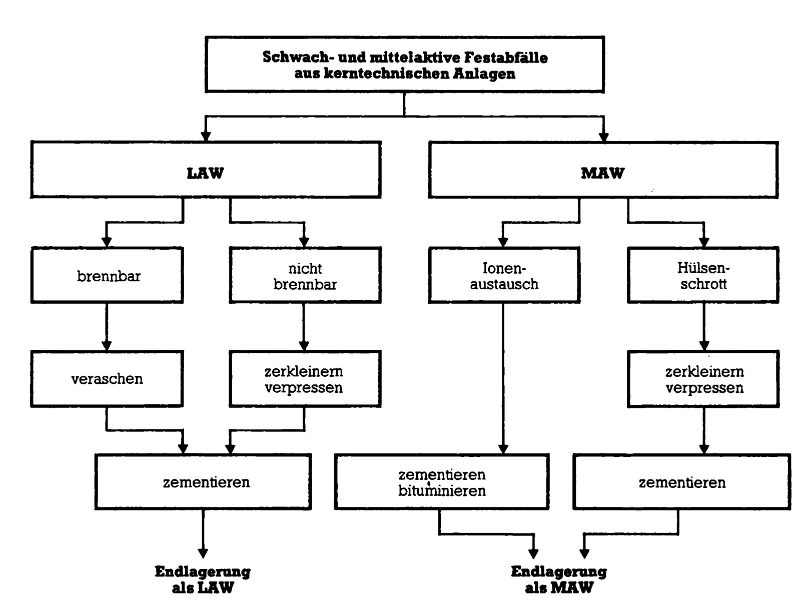



Abb. 23: Aufbereitung fester radioaktiver Abfälle

scher Auskleidung verwendet, die Temperaturen um 1000° C zulassen und damit vollständige Verbrennung gewährleisten. Die im Rohabfall ursprünglich enthaltene Aktivität ist nach dessen Verbrennung fast vollständig in der Asche enthalten. Diese Verbrennungsrückstände müssen noch an Zement gebunden werden, bevor sie zum Endlager abgegeben werden können.

Bei den nicht brennbaren Abfällen werden Volumenreduzierungen um den Faktor 3:1 bis 7:1 durch Zerkleinern und Verpressen erreicht. Die Preßlinge werden in einen aus Lochblech gefertigten Korb ausgestoßen, der in ein Faß eingesetzt ist. Durch Einfüllen von Zementbrei wird der kompaktierte Abfall umschlossen und kann so endgelagert werden [4]. Wegen seiner höheren spezifischen Aktivität nimmt der bei der Wiederaufarbeitung anfallende Hülsenschrott eine besondere Stellung ein. Seine Kompaktierung und Fixierung in Beton kann erst nach längerer Zwischenlagerung in der Wiederaufarbeitungsanlage vorgenommen werden. Eine stark vereinfachte Übersicht über die Verfahren zur Konditionierung des radioaktiven Festabfalls zeigt Abb. 23.

## 7.2.2 Behandlung hochradioaktiver Abfälle

Der hochaktive Abfall fällt in der Wiederaufarbeitungsanlage als wässerige Lösung an. Sie enthält über 99% der mit dem Brennstoff aufgelösten Spaltprodukte sowie geringe Reste von Uran und Aktiniden.

Die in Verdampfern aufkonzentrierte hochaktive salpetersaure Lösung wird derzeit noch in Edelstahltanks bei der Wiederaufbereitungsanlage gelagert. Da die Flüssiglagerung einer ständigen Überwachung bedarf und sie überdies die Isolierung der Abfälle vom Biozyklus über mehrere tausend Jahre hinweg nicht gewährleisten kann, muß der hochaktive Waste ebenfalls in ein endlagerfähiges festes Produkt überführt werden. Dies ist frühestens nach etwa fünfjähriger Tanklagerzeit möglich, wenn die ursprüngliche Nachzerfallswärmeleistung von rd. 1 Kilowatt auf weniger als 0.06 Kilowatt pro kg Spaltprodukte abgesunken ist [5].

Die wichtigsten Anforderungen, die an den verfestigten hochaktiven endlagerfähigen Abfall gestellt werden müssen, sind:

- hohe Auslaugresistenz
- gute Wärmebeständigkeit und gute Wärmeleitfähigkeit
- hohe Strahlungsbeständigkeit
- gute mechanische Festigkeit

Diese Bedingungen werden am besten durch Glas- oder Keramikkörper erfüllt.

Es gibt derzeit mehrere unterschiedlich weit entwickelte Verglasungsverfahren, die sich jedoch hinsichtlich der prinzipiellen Verfahrensschritte ähnlich sind.

Zunächst wird die restliche freie Salpetersäure des Hochaktivkonzentrats durch Denitrierungsverfahren entfernt. Durch weiteres Eindampfen und anschließendes Erhitzen auf 400—800° C werden die Spaltprodukt- und Aktinidennitrate zu Oxiden kalziniert. Diese fallen als Pulver, Granulate

oder Salzkuchen an. Durch Erhitzen des Oxidgemisches nach Zuschlag von Glasbildnern ($SiO_2$, $B_2O_3$, $TiO_2$, $CaO_3$, Alkalioxide u. a.) auf 900—1200° C entstehen Borosilikatgläser, in denen bis zu 25 % Radionuklide außerordentlich fest gebunden sind [6].

Neben Borosilikatgläsern wurden auch Phosphatgläser zur Fixierung des hochaktiven Wastes eingesetzt. Sie entstehen beim Eindampfen und Einschmelzen der Hochaktivlösung bei Gegenwart von Phosphorsäure. In Phosphatgläsern können zwar bis zu 30 % Spaltprodukte fixiert werden, jedoch sind sie den Borosilikatgläsern hinsichtlich der Wärmebeständigkeit bei Temperaturen über 500° C und hinsichtlich ihrer Auslaugresistenz unterlegen. Die durch Experimente und Berechnungen gefundenen Auslaugungsraten fester Glasblöcke liegen bei etwa 2 % in 10000 Jahren.

Tab. 15: Eigenschaften und Abmessungen eines Blocks aus Borosilikatglas

| | |
|---|---|
| Spaltproduktoxide | ca. 20 Gew. % |
| Dichte | 2,8 g/cm³ |
| max. stabile Temperatur | 900° C |
| Volumen | 71 Liter (199 kg) |
| Durchmesser | 26 cm |
| Höhe | 175 cm |

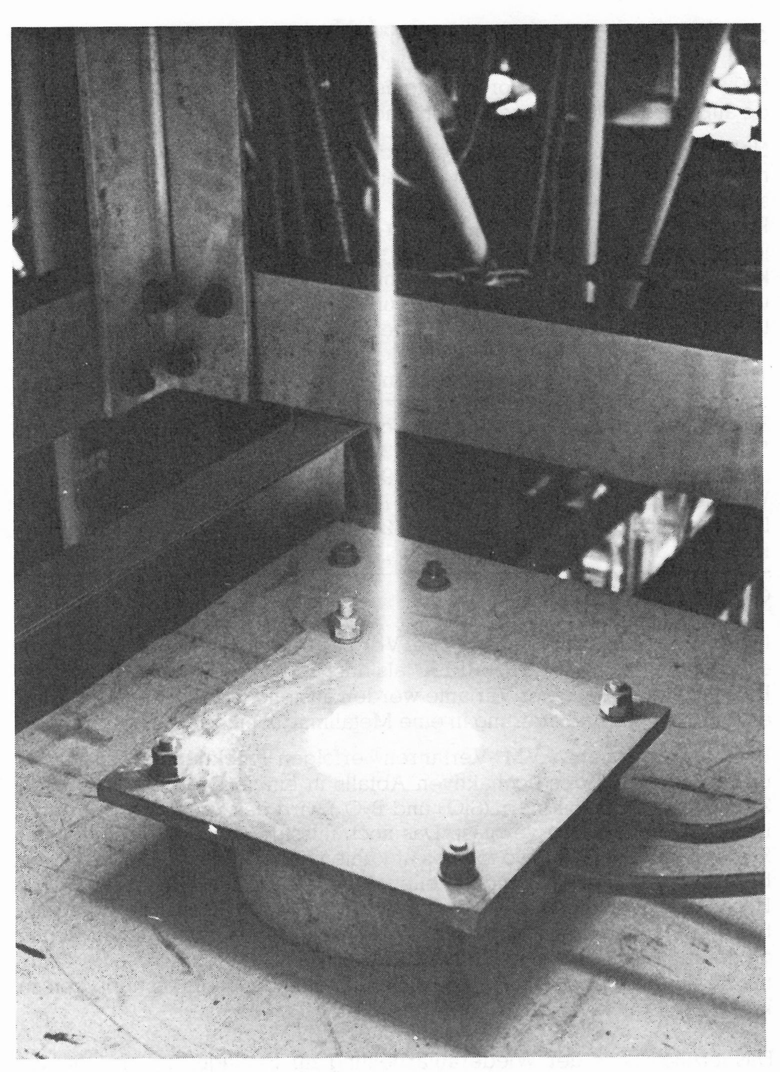
Quelle: [7]

In der Bundesrepublik werden zwei Verglasungsverfahren entwickelt und erprobt. Beide, sowohl „PAMELA" als auch „FIPS", erzeugen Blöcke aus Borosilikatglas. Bei einer Variante werden anstelle der Blöcke Glasperlen erzeugt, die zur Endlagerung in eine Metallmatrix eingebettet werden.

Beim französischen „AVM"-Verfahren[3] erfolgen Trocknung, Denitrierung und Kalzinierung des hochaktiven Abfalls in einem Drehrohrofen. Nach Zuschlag von Glasbildnern ($SiO_2$ und $B_2O_3$) wird das Spaltproduktkalzinat in einem Schmelzofen verglast. Das noch flüssige Borosilikatglas fließt in Kokillen aus Edelstahl, wo man es abkühlen läßt. Da das AVM-Verfahren bereits seit 1978/79 im industriellen Maßstab für die Verglasung von Hochaktivwaste angewendet wird, ist es derzeit das Verfahren der Wahl bei den Planungen für eine größere deutsche Wiederaufarbeitungsanlage. In der WAK wird eine kleinere Versuchsanlage gebaut, um die Technik an die anders gelagerte deutsche Genehmigungspraxis anpassen zu können.

Das letztlich nach der Wiederaufarbeitung zur Endlagerung anstehende Volumen für ein Gigawattjahr (GW·a) nuklearelektrischer Energieerzeugung beträgt zwischen 2,5 und 3 Kubikmeter.

3) AVM = Atelier de Vitrification de Marcoule



*Verglasung radioaktiver Abfälle in Marcoule, Frankreich* Foto: CEA

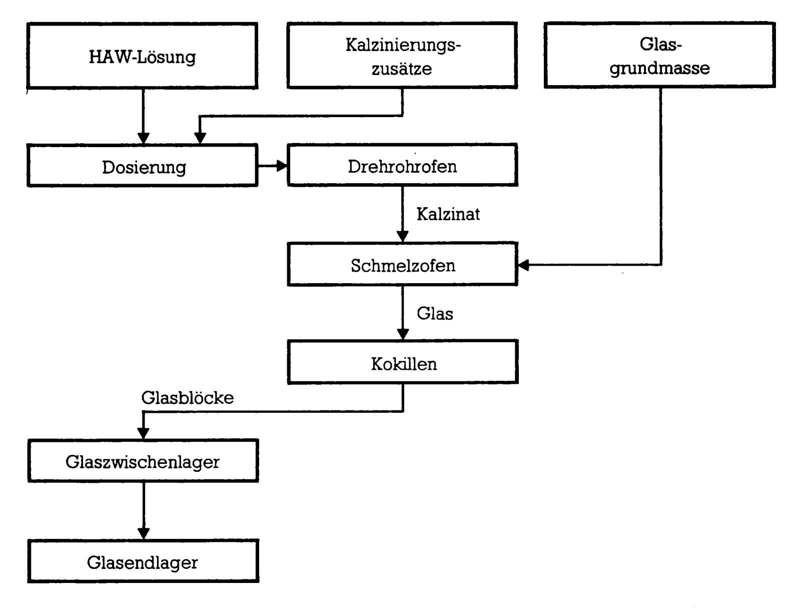



Abb. 24: Vereinfachtes Verfahrensschema des AVM-Verglasungsverfahrens

## 7.3 Lagerung abgebrannter Brennelemente

### 7.3.1 Zwischenlager

Im vorangehenden Kapitel wurde bereits darauf hingewiesen, daß der Aufarbeitungsbedarf der Bundesrepublik nur bis etwa 1986 gedeckt ist. Die Errichtung einer größeren Wiederaufarbeitungsanlage in der Bundesrepublik wird derzeit noch im politischen Raum diskutiert. Daher muß heute davon ausgegangen werden, daß größere Mengen von abgebrannten Brennelementen solange in Zwischenlagern untergebracht werden müssen, bis eine Entscheidung zur Entsorgungsstrategie gefällt wird. Fällt die Entscheidung gegen die Errichtung von Wiederaufarbeitungsanlagen, müssen die Brennstoffe aus den Zwischenlagern in Endlager verbracht werden.

Brennelementzwischenlager können sowohl Naß- als auch Trockenlager sein, die entweder in den Kernkraftwerken selbst oder als regionale Zwischenlager errichtet werden können. Um die Kapazität der Lagerbecken in den Kernkraftwerken zu erhöhen, kann durch Verwendung von Neutronenabsorbern im Konstruktionsmaterial der Lagergestelle die zulässige Packungsdichte der Brennelemente erhöht werden. Einige Kernkraft-

werksbetreiber haben die Genehmigung für die Einrichtung solcher Kompaktlager bereits erhalten.

Ein Genehmigungsverfahren für den Bau eines zentralen Naßlagers bei Ahaus mit einer Kapazität von 1500 t Schwermetall läuft seit 1978 [9].

Der bei der Beckenlagerung verhältnismäßig große apparative Aufwand und hohe Wartungsbedarf führte zur Alternative der Trockenlagerung von Brennelementen in Typ-B-Behältern ähnlich denen, wie sie auch für den Transport von abgebrannten Brennelementen verwendet werden (s. S. 83). Ein Lagerkonzept für kombinierte Transport- und Lagerbehälter aus Sphärographitguß, die 4 DWR- bzw. 16 SWR-Brennelemente aufnehmen können, ist von der DWK[1]) entwickelt worden. Die etwa 40 cm dicken Wandungen der Behälter bieten ausreichende Strahlenabschirmung und Sicherheit gegen äußere Einflüsse. Die Nachwärmeabfuhr erfolgt über Naturkonvektion mit Umgebungsluft [8]. Die Vorteile der Trokkenlagerung bestehen in der geringen Abhängigkeit von externer Medien- und Energieversorgung sowie in der geringeren Wartungsbedürftigkeit gegenüber der seit vielen Jahren erprobten Naßlagerung. Mit dem Bau eines Trockenlagers auf dem Standort Gorleben soll noch 1981 begonnen werden.

## 7.3.2 Endlager

Seit 1977 wird durch die USA der langfristige, eventuell sogar der endgültige Verzicht auf die Wiederaufarbeitung vertreten. Unter Hervorhebung der erhöhten Proliferationsgefahr, die sich aus dem geschlossenen U/Pu-Kreislauf ergebe, werden die westlichen Kernenergieländer ermuntert, sich diesem Verzicht anzuschließen. Diese Variante erfordert die Entwicklung von Techniken zur Endlagerung von abgebrannten Brennelementen. Da diese Entsorgungsvariante, der sogenannte Wegwerfzyklus, erst seit wenigen Jahren überhaupt in Betracht gezogen wird, sind alle Entwicklungen auf dem Gebiet der direkten Endlagerung noch im Konzept bzw. Experimentierstadium.

Fest steht heute jedoch schon, daß unverpackte Brennelemente nicht endlagerfähig sind. Erst nach entsprechender Konditionierung kann die Lagerung unterirdisch in grundwassersicheren stabilen geologischen Formationen erfolgen.

Das ökologische Gefährdungspotential endgelagerter Brennelemente ist über lange Zeiträume hinweg höher einzuschätzen als das der hochaktiven Gläser, da erstere neben den festen auch alle gasförmigen und leichtflüchtigen Spaltprodukte, insbesondere aber das gesamte Plutonium enthalten. Ein ziemlich weit durchdachtes schwedisches Konzept sieht den Einschluß der vereinzelten hochaktiven Brennstäbe in einer Kupferbüchse mit 20 cm Wandstärke vor. Die sich im Inneren des etwa 5 m langen Behälters ergebenden Hohlräume sollen mit Blei ausgegossen werden. Danach wird der Behälter gasdicht verschweißt. Man hofft, eine Lebensdauer der Kupferbehälter von mindestens 100000 Jahren garantieren zu

1) DWK = Deutsche Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

können. Nach 40jähriger Zwischenzeit sollen die Behälter ins Endlager gebracht werden [10]. Da in Schweden keine Salzstöcke vorkommen, soll die Endlagerung im Granit in 500 m Tiefe vorgenommen werden. Die von Strecken aus niedergebrachten verrohrten Bohrungen werden nach Aufnahme der Behälter mit Bentonit, einer Art Ton, verfüllt. Das gleiche gilt für die Strecke selbst nach Abschluß der Einlagerung.

In der Bundesrepublik sollen Untersuchungen zur direkten Endlagerung abgebrannter Brennelemente beschleunigt vorangetrieben werden, damit bis Mitte der 80er Jahre ein Urteil darüber möglich ist, ob die Wegwerfvariante Vorteile gegenüber dem geschlossenen Brennstoffzyklus bietet [11].

## 7.4 Endlagerung radioaktiver Abfälle

Die durch Verdichtung, Konditionierung und Verpackung des radioaktiven Abfalls geschaffenen Formen reichen aus für deren sichere Handhabung und kurzfristige oberirdische Zwischenlagerung. Für die über Jahrtausende hinweg sichere Isolation vom Biozyklus wurde eine größere Anzahl von Konzepten in Betracht gezogen. Dies waren unter anderen:

- Raketentransport in den Weltraum
- Lagerung auf oder unter dem Meeresboden
- Lagerung in der Tiefe von stabilen geologischen Formationen.

Nur die letzte der genannten Optionen, bei der bewährte konventionelle Bergbautechnik angewendet werden kann, wird in näherer Zukunft praktische Bedeutung erlangen.

Wichtigste Kriterien für die Wahl einer endlagergeeigneten geologischen Formation sind die Abwesenheit von Grundwasser, das Fehlen von Klüften und Rissen sowie möglichst hohe Plastizität und großes Absorptionsvermögen des Gesteins.

Bei der Einlagerung von hochaktiven Abfällen spielen neben den vorgenannten Kriterien die Wärmeleitfähigkeit und die Strahlenresistenz des Gesteins eine Rolle. Der gewählte Standort sollte schließlich in einem Gebiet geringer seismischer Aktivität liegen.

Geologische Formationen, die eine hinreichende Kombination der geforderten Eigenschaften aufweisen, sind Steinsalz, Anhydrid, Schiefer und ungestörte kristalline Gesteine wie Basalt und Granit. In ariden Gebieten wird auch Kalkstein für geeignet gehalten [12]. Nach bis heute vorliegenden vergleichenden Untersuchungsergebnissen aus den USA bieten sowohl Granit als auch Steinsalzformationen die notwendige Gewähr für den sicheren Einschluß gekapselter radioaktiver Abfälle.

Die Auswahl der einen oder anderen geologischen Formation als Endlagerstätte dürfte daher weniger durch die Frage nach der bestgeeigneten Gesteinsart als vielmehr durch die nationale Verfügbarkeit einer geeigneten Gesteinformation bestimmt werden.

In der Bundesrepublik sind geeignete Steinsalzformationen in genügender Anzahl vorhanden, um die Entsorgung von radioaktiven Abfällen zu gewährleisten.

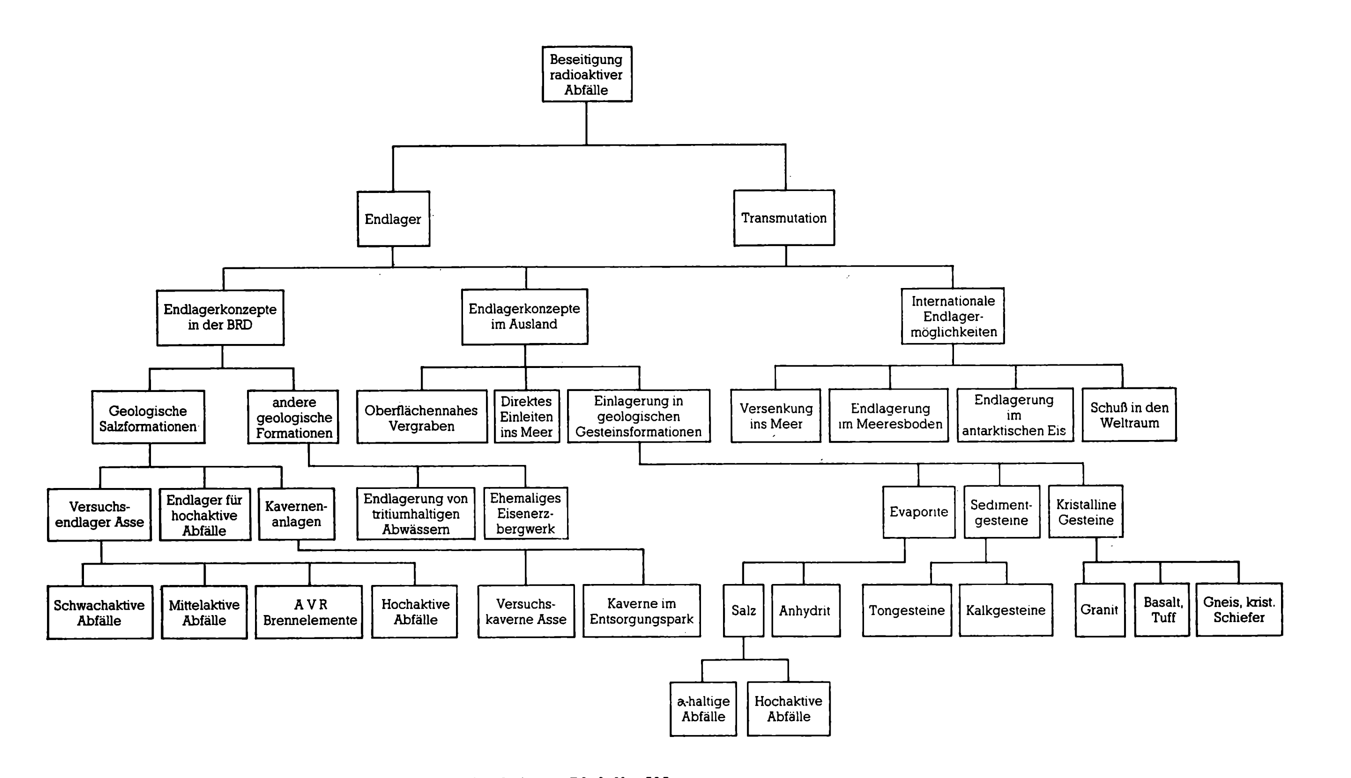



Abb. 25: Endlagerungsmöglichkeiten radioaktiver Abfälle [1]

## 7.4.1 Endlagerung in Steinsalzformationen

Auf den ersten Blick scheint die gute Wasserlöslichkeit von Salz eher gegen seine Eignung als Endlagerstätte zu sprechen.

Man muß sich jedoch vor Augen halten, daß die Existenz von Salzlagerstätten der Beweis dafür ist, daß sie seit ihrer Entstehung nicht mehr mit Wasser in Kontakt gekommen sind, weil sie dann längst ausgelaugt worden wären. In ihnen eingelagerte Abfälle sollten daher genauso gut gegen Wasserzutritt geschützt sein.

Nun drängt sich sofort die Frage auf, ob die heute zweifellos bestehende Stabilität der Salzstöcke über mehrere Jahrtausende hinweg Bestand haben wird.

Die in Norddeutschland gelegenen Salzlager sind im Permzeitalter (vor 240—225 Millionen Jahren) als Ablagerungen des Zechsteinmeeres entstanden.

Im Trias (vor 225—195 Millionen Jahren) wurde das Zechsteinsalz von etwa 2500 m dicken Gesteinsschichten überdeckt, unter deren Druck das Salz zu fließen begann. Aufgrund des geringeren spezifischen Gewichtes begann der „Salzbrei" durch Schwachstellen der aufliegenden Gesteinsschichten nach oben durchzubrechen und bildete Salzstöcke (Diapire). Dieses Aufwärtsquellen dauerte etwa 20 Millionen Jahre und war im Kreidezeitalter vor etwa 100 Millionen Jahren abgeschlossen.

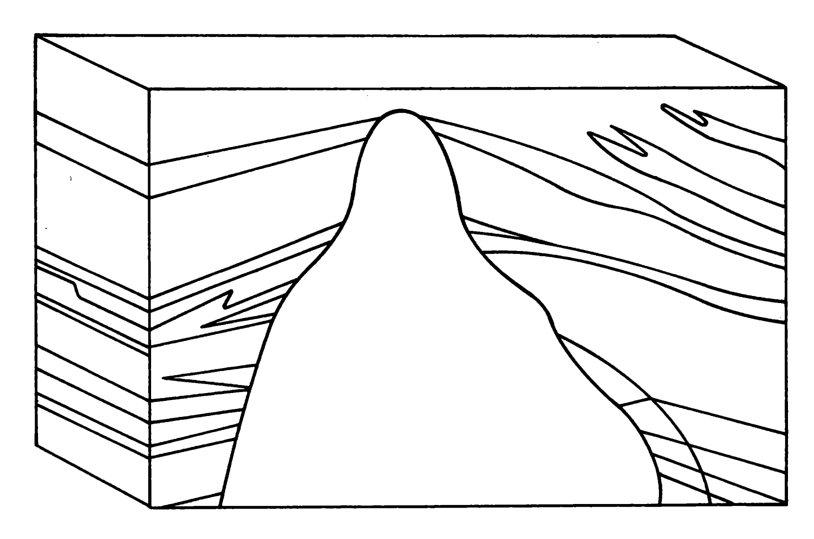


Abb. 26: Typische Form eines Salzstocks

Seither haben sich die so entstandenen Salzstöcke nicht mehr verändert. Sie sind damit älter als z. B. der Harz und die Alpen und haben mehrfach Überflutungen im Tertiär (vor 65—2 Millionen Jahren) ohne Schaden überstanden. Die Geologen glauben daher eine gut begründete Aussage dar-

über machen zu können, daß sich die Salzstöcke im Verlauf der nächsten Jahrmillion, wenn überhaupt, nur unwesentlich bewegen werden [13].

Neben dieser Langzeitstabilität, die wir ins Verhältnis setzen müssen zur notwendigen Abklingzeit des hochaktiven Abfalls von einigen 1000 Jahren, zeichnet sich das Steinsalz durch seine hohe Wärmeleitfähigkeit aus. Sie ist etwa 2- bis 3fach besser als die aller anderen Gesteine. Darüber hinaus ist es sehr gasdicht durch das Fehlen von Rissen und Klüften.

In der Bundesrepublik wird seit 1964 das stillgelegte Salzbergwerk Asse II bei Braunschweig als Versuchslagerstätte genutzt. Bis zum Auslaufen der Genehmigung zur Einlagerung schwach- und mittelaktiver Abfälle Ende 1978 wurden dort mehr als 120000 Fässer (ca. 24000 $m^3$) mit schwachaktivem und knapp 1300 Fässer mit mittelaktivem Abfall eingelagert.

Bei der früheren Ausbeutung des Salzstocks Asse wurden in der Teufe zwischen 490 und 800 m auf fünfzehn Ebenen etwa einhundert Kammern abgebaut. Von diesen Kammern, die etwa die Masse $60 \times 40 \times 15$ m = 36000 $m^3$ haben, wurden einige für die Einlagerung von radioaktiven Abfällen genutzt.

Zur Einlagerung zugelassen sind nur feste, in Fässern verpackte Abfälle. Je nachdem, ob es sich um schwach- oder mittelaktive Abfälle handelt, werden unterschiedliche Einlagerungsmethoden angewandt.

Die bei der Schachtanlage angelieferten Fässer mit schwachaktiven Abfällen werden nach Überprüfung der Oberflächendosisleistung von einem Gabelstapler abgesetzt. Der Förderkorb kann 12 Abfallfässer aufnehmen. Im Füllort der 750-m-Sohle werden die Fässer entnommen und zum Lagerort transportiert. Bis 1974 wurden die Fässer in den Lagerkammern mit Hilfe eines speziell entwickelten Mehrzweckfahrzeuges gestapelt. Seit Ende 1974 wurde eine neue Einlagerungsmethode erprobt, die erhöhte Arbeitsplatzsicherheit und bessere Umschließung der Fässer durch das Salz bei gleichzeitig besseren betrieblichen und wirtschaftlichen Bedingungen bietet. Hierbei wird die bestehende Lagerkammer seitlich in entsprechender Höhe angefahren und im Inneren der Kammer eine Salzböschung aufgeschüttet. Die im Füllort eintreffenden Fässer werden mit Hilfe eines Schaufelladers zur Lagerkammer gefahren und über die Böschung abgekippt. Sie rutschen oder rollen nach unten und werden in kürzeren Abständen mit Abraumsalz überdeckt.

Nach der Beladung mit Fässern werden die restlichen Hohlräume mit Abraumsalz aufgefüllt und die Kammern verschlossen.

Da mittelaktive Abfälle an der Oberfläche der Fässer Dosisleistungen zwischen einigen Röntgen pro Stunde bis ca. $10^5$ R/h weisen, kann deren Handhabung und Einlagerung nicht mehr ohne Abschirmung durchgeführt werden.

Derartige Abfälle werden in Abschirmbehältern bei der Schachtanlage angeliefert. Sofern der Antransport in Mehrfachbehältern erfolgte, müssen die Fässer in Einzelbehälter umgeladen werden, da der Förderkorb nur bis maximal 9,8 t belastet werden darf.

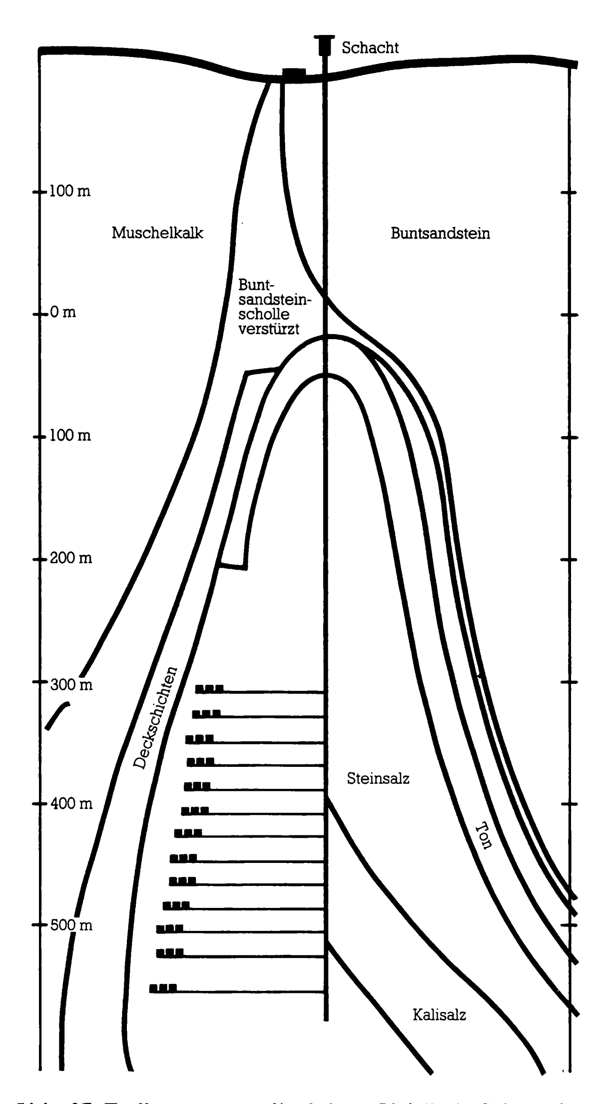



Abb. 27: Endlagerung radioaktiver Abfälle in Salzstöcken

Die Einlagerung der Mittelaktivfässer erfolgt in einer vom übrigen Grubenbau isolierten Kammer auf der 511-m-Sohle.

Nach Eintreffen auf der 490-m-Sohle wird der Abschirmbehälter durch einen Auslegerkran vom Förderkorb abgehoben, auf einem Tieflader abge-

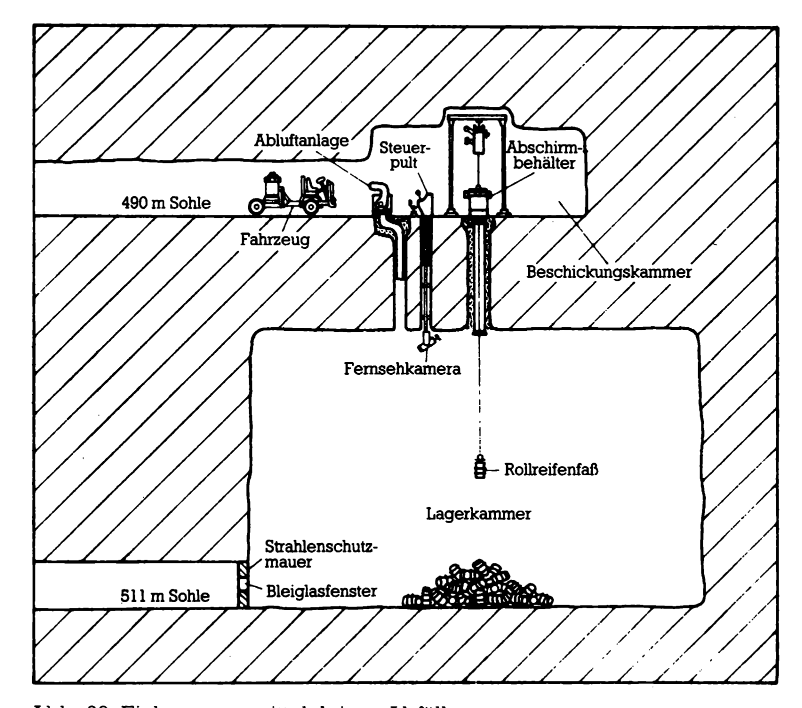



Abb. 28: Einlagerung mittelaktiver Abfälle

setzt und zur Beschickungskammer gefahren. Hier wird der Abschirmbehälter mit Hilfe eines Kranes auf die Beschickungsbohrung gehoben. Nach dem Öffnen des Behälterbodens und des Bohrlochverschlusses wird das an einem Stahlseil hängende Faß bis auf den Boden der Lagerkammer abgesenkt und ausgeklinkt. Das Volumen der Lagerkammer beträgt insgesamt etwa 8000 m³. Es wird damit gerechnet, daß sie etwa 10000 Fässer mit 200 ltr Inhalt aufnehmen kann. Die Kontrolle der Einlagerung erfolgt über einen Fernsehmonitor im Steuerpult der Beschickungsanlage. Bis Ende 1978 sind knapp 1300 Fässer auf diese Art eingelagert worden.

Da in Zukunft mit einem höheren jährlichen Aufkommen gerechnet werden muß, wurde auf dem Gelände der Schachtanlage Asse II mit dem Abteufen eines neuen Schachtes und dem Bau einer weitgehend automatisierten Beschickungsanlage begonnen. Für die Einlagerung wird eine Kaverne von etwa 10000 m³ Rauminhalt zwischen 959 und 995 m bergmännisch aufgefahren. Die hierbei gewonnenen Erfahrungen werden unmittelbar der geplanten Endlagerstätte Gorleben zugute kommen.

Die Einlagerung hochaktiver verglaster Abfälle wird derzeit noch nicht praktiziert. Die bisher in geringen Mengen angefallenen flüssigen Hochaktivabfälle lagern noch bei der Wiederaufarbeitungsanlage Karlsruhe (WAK).

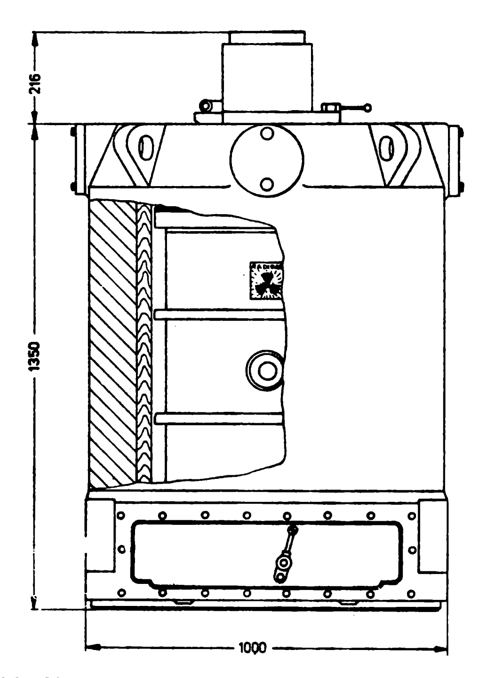



Abb. 29: Abschirmbehälter für radioaktive Abfälle

Obwohl das Versuchsendlager Asse für die Lagerung von verglastem HAW nicht infrage kommt, dient die Anlage derzeit für die Entwicklung und Erprobung von entsprechenden Techniken — so wurden in den vergangenen Jahren insbesondere die Wärmeausdehnung und Wärmeverteilung sowie das Deformationsverhalten von Salz durch Einbringen von Wärmequellen studiert. Zu einem späteren Zeitpunkt ist beabsichtigt, auch verfestigte hochaktive Abfälle einzulagern, die nach Beendigung der Versuche wieder entfernt werden.

Aufgrund der bis jetzt bereits gewonnenen Versuchsergebnisse soll die großtechnische Lagerung des HAW getrennt von den Grubenfeldern für den schwach- und mittelaktiven Abfall in einem abgetrennten Teil der Grube erfolgen. Dazu sollen etwa 1000 m lange parallele Lagerstrecken aufgefahren werden, von deren Boden aus etwa 50 m tiefe Bohrungen niedergebracht werden. Der Abstand der Bohrlöcher, die den verfestigten Hochaktivfall aufnehmen werden, wird zwischen 10 und 20 m betragen. Jedes Bohrloch wird etwa 40 HAW-Glaskokillen aufnehmen können.

Transport und Einlagerung der Kokillen unter Tage wird ähnlich gehandhabt werden können wie dies bereits mit dem mittelaktiven Abfall in der Asse-Anlage erprobt ist:

Mit dem Schachthallenkran wird der beladene Abschirmbehälter in den Förderkorb gesetzt. Unter Tage entladen,, wird er mit Tiefladern zur Lagerstrecke gefahren, auf der mit einem Schieber verschlossenen Boh-

rung abgesetzt und zentriert. Nach dem Öffnen der Schieber von Behälter und Bohrung wird die Kokille in das Bohrloch abgesenkt. Wenn die vorgesehene Zahl von Glaskörpern eingebracht ist, wird das Bohrloch mit mehreren Schichten Salz und Beton über eine Länge von etwa 10 m verschlossen.

Nach Beendigung der Einlagerung wird auch die Strecke wieder verfüllt [15]. Ein Bohrloch wird den hochaktiven verfestigten Abfall, der beim Betrieb eines Kernkraftwerks von 1250 $MW_e$ jährlich anfällt, aufnehmen könnnen.

Die Notwendigkeit der großtechnischen Einlagerung wird sich erst in etwa 15—20 Jahren ergeben; die Zeit bis dahin wird für weitere umfangreiche technische und sicherheitsrelevante Forschungs- und Entwicklungsarbeiten und die Eignungsprüfung des Salzstocks Gorleben genutzt werden.

## 7.4.2 Behandlung und Lagerung gasförmiger Abfälle

Im Head-End der Wiederaufarbeitung werden gas- und dampfförmige Radionuklide freigesetzt, für deren Fixierung und Lagerung die vorab beschriebenen Methoden nicht anwendbar sind. Es handelt sich hierbei um das Isotop Krypton 85 (Halbwertszeit 10,85 a), das Jodisotop 129 (Halbwertszeit $1{,}57 \cdot 10^7$a) und um das radioaktive Wasserstoffisotop Tritium (Halbwertszeit 12,3 a).

Für die Rückhaltung von Krypton wird die Tieftemperaturrektifikation eingesetzt werden, die sich in ähnlicher Form für die Luftverflüssigung bewährt hat. Das bei diesem Verfahren gewonnene flüssige Krypton wird in Stahldruckflaschen abgefüllt und in einem besonderen Lager aufbewahrt werden müssen. Die gefüllten Flaschen müssen wegen der entstehenden Zerfallswärme gekühlt werden. Aufgrund der relativ kurzen Halbwertszeit ist das Krypton nach etwa 100 Jahren fast vollständig zu nicht aktivem Rubidium-85 zerfallen.

Eine Abscheidungsanlage für Krypton wird in der ersten Hälfte der 80er Jahre in der WAK erprobt.

Radioaktives Jod-129 erscheint ebenfalls im Abgasstrom der Wiederaufarbeitung. Es kann durch in jüngerer Zeit im Kernforschungszentrum entwikkelte silbernitratimprägnierte Feststoffilter zu über 99% aus dem Abgasstrom entfernt werden. Das Jod wird dabei unter Bildung von Silberjodid an das Filtermaterial gebunden. Erschöpfte Filter können als Festabfall weiterbehandelt und endgelagert werden. Das Verfahren wird in der WAK und in Cap de la Hague bereits mit gutem Erfolg eingesetzt.

Knapp 1% des im abgebrannten Brennstoff enthaltenen Tritiums fällt bei der Aufarbeitung im Abgasstrom der Eingangsstufe an, größere Mengen finden sich als Tritiumwasser (HTO) in den schwach- und mittelaktiven Kondensaten. Es kann wegen seiner chemischen Identität mit dem normalen Wasserstoff durch keines der bekannten Dekontaminationsverfahren abgetrennt werden. Die bisher praktizierte Methode der Verdünnung und Abgabe kann dann nicht mehr angewandt werden, wenn größere Men-

gen dieses an sich schwachen β-Strahlers anfallen. Zwei Wege, das Einpressen tritiumhaltiger Wässer in poröse Schichten des tiefen Untergrundes (erschöpfte Öllagerstätten) und Bindung an Zement und anschließende Endlagerung werden z. Z. untersucht.

## 7.5 Konzept der integrierten Entsorgung

In Zusammenarbeit mit der Industrie und den Kernforschungszentren wurde von der Bundesregierung das Konzept des nuklearen Entsorgungszentrums entwickelt. Hiernach war vorgesehen, die Anlagen zur Wiederaufarbeitung, Abfallbehandlung und Endlagerung sowie die Verarbeitung von Plutonium und Uran zu neuen Brennelementen funktional und räumlich in einem Komplex zusammenzufassen. Die Vorteile eines solchen Entsorgungszentrums lägen einmal darin, daß Transporte radioaktiven Materials auf ein Minimum beschränkt werden können, andererseits der Schutz von Anlagen und Material gegen äußere Einflüsse verbessert und vereinfacht würde und daß schließlich die international geforderte Kontrolle der Spaltstoffe effektiver gehandhabt werden könnte.

Das geplante Projekt wurde in mehrere Teilbereiche mit nach Dringlichkeit unterschiedlichen Inbetriebnahmeterminen aufgegliedert:

- Brennelementlagerung
- Wiederaufarbeitung, Abfallbehandlung und Zwischenlagerung
- Plutoniumbrennelementherstellung
- Abfallendbehandlung
- Abfallendlager

Als Standort für die Errichtung der Anlage wurde ein Gelände von ca. 12 km$^2$ bei Gorleben im Kreis Lüchow-Dannenberg vorgesehen. Unmittelbar unter dem Gelände befindet sich ein Salzstock mit einem Volumen von etwa 80 km$^3$, der, vorbehaltlich genauerer bergmännischer Untersuchungsergebnisse, für die Einrichtung eines Endlagers geeignet ist.

Die Planung sah einen jährlichen Durchsatz von 1500 t abgebranntem LWR-Brennstoff vor, ausreichend, um einen nuklearen Kraftwerkspark von rund 45000 $MW_e$ zu entsorgen.

Die Errichtung sollte mit dem Bau der Brennelementlager Mitte 1980 beginnen und Ende 1993 mit der Inbetriebnahme des Hochaktivendlagers abgeschlossen werden.

Der überaus heftige Widerstand, der dem Projekt durch die Öffentlichkeit entgegengesetzt wurde, führte nach dem Gorleben-Hearing in Hannover 1979 zur Entscheidung der niedersächsischen Landesregierung, die Genehmigung zum Bau der Wiederaufarbeitungsanlage nicht zu erteilen. Die vorbereitenden Arbeiten mußten daher auf das Teilprojekt Abfallendlager beschränkt werden.

Angesichts dieser Entwicklung haben die Regierungschefs von Bund und Ländern am 28.9.1979 neue Entsorgungsgrundsätze beschlossen. Das neue Konzept setzt an die Stelle des politisch nicht durchsetzbaren nuklearen Entsorgungszentrums den Begriff der „integrierten Entsorgung".

Wichtige Elemente dieses Beschlusses sind:

— Die Wiederaufarbeitung abgebrannter Brennelemente, die Rückführung unverbrauchter Kernbrennstoffe und die Endlagerung der radioaktiven Abfälle sind sicherheitstechnisch realisierbar, ökologisch vertretbar und wirtschaftlich sinnvoll.
— Eine Wiederaufarbeitungsanlage soll so zügig wie möglich gebaut werden.
— Alternative Entsorgungstechniken, insbesondere die direkte Endlagerung abgebrannter Brennelemente, werden untersucht (Ziel: Mitte der 80er Jahre).
— Für den sich ergebenden Zwischenlagerbedarf für abgebrannte Brennelemente sind ausreichende Lager in Form von Kompaktlagern oder externen Zwischenlagern zu schaffen.
— Die oberirdischen Fabrikationsanlagen für die zu wählende Entsorgungsvariante und die Sicherstellung der unterirdischen Endlagerung werden zum Ende der 90er Jahre betriebsbereit gemacht.

Das neue Konzept stellt einen zeitlichen und technischen Rahmenplan für die Realisierung der nuklearen Entsorgung in der Bundesrepublik Deutschland dar.

Erste Schritte zur Verwirklichung dieses Planes sind die in Ahaus (Nordrhein-Westfalen) und in Gorleben (Niedersachsen) in Angriff genommenen externen Zwischenlager, die Zulassung von Kompaktlagern in einigen Bundesländern und die Bereitschaft des Landes Hessen, eine Wiederaufarbeitungsanlage von 350 t/Jahr aufzunehmen.

Literatur zu Kapitel 7

[1] Zur friedlichen Nutzung der Kernenergie
Eine Dokumentation der Bundesregierung
Abschn. III d 3: Behandlung radioaktiver Abfälle (Konditionierung) und Zwischenlagerung, Bonn 1977

[2] Krause, H.: Waste Management, Decontamination and Health Physics
IAEA interregional Training Course, Karlsruhe 1979

[3] Bähr, W. et alt.: Die Verbrennungsanlage für radioaktive Abfälle des Kernforschungszentrums Karlsruhe
KfK 2300, Juni 1976

[4] Bähr, W.; Hild, W.: Behandlung schwach- und mittelaktiver Abfälle aus kerntechnischen Anlagen.
Atomwirtschaft-Atomtechnik, Jahrg. XXI, Nr. 7 (Juli) 1976

[5] Baumgärtner, F.: Sicherheit und Umweltschutz bei der nuklearen Entsorgung (Referat)
Herausgeber: Bundesminister für Forschung und Technologie, Bonn 1979

[6] Krause, H.: Behandlung und Endlagerung radioaktiver Abfälle aus dem Brennstoffkreislauf. In: „Kernbrennstoffkreislauf, Bd. II".
Herausgeber: Keller, C.; Möllinger, H., Heidelberg 1978

[7] Schimmele, G.: Die Entsorgung der Kernkraftwerke.
Reihe Fachvorträge 77/1, Badenwerk AG, Karlsruhe 1977

[8] Transportbehälterlager.
Die trockene Lagerung von ausgedienten Brennelementen. Deutsche Gesellschaft zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH., Hannover

[9] —: Brennelementzwischenlager Ahaus, Kurzbeschreibung.
Herausgeber: Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen GmbH, Essen 1978

[10] Handling and Final Storage of Unreprocessed Spent Nuclear Fuel
Vol I and II, KBS-Report 1978

[11] Bulletin der Bundesregierung Nr. 122 (11. Oktober 1979)

[12] Energy in Transition 1985—2010. Final Report of the Committee on Nuclear and Alternative Energy Systems National Research Council. (CONAES)
National Academy of Sciences Washington DC 1979

[13] Venzlaff, H.: Tieflagerung radioaktiver Abfälle aus geologischer Sicht.
Reihe der atw-Broschüren Nr. 13, Sichere Entsorgung? Düsseldorf 1978

[14] Baumgärtner, F.: Sicherheit und Umweltschutz bei der nuklearen Entsorgung.
Informationsschrift des Bundesministers für Forschung und Technologie, Bonn 1979

[15] —: Bericht über das in der Bundesrepublik geplante Entsorgungszentrum.
Deutsche Gesellschaft für Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen mbH, Hannover 1977

# 8. Geschlossener oder offener Brennstoffkreislauf?

Der Brennstoffkreislauf eines Kernkraftwerks gilt dann als geschlossen, wenn die über die Wiederaufarbeitung zurückgewonnenen Spaltstoffe dem Reaktor wieder in Form neuen Brennstoffs zugeführt werden.

Vom offenen Kreislauf oder Wegwerfzyklus wird dann gesprochen, wenn der abgebrannte Brennstoff zur Endlagerung gegeben wird.

Bis zur Mitte der 70er Jahre wurde die geschlossene Variante in fast allen Kernenergieländern vorgezogen, wobei sowohl ökologische, technisch-wirtschaftliche und energiepolitische Gesichtspunkte gleichrangig gewertet wurden. Seit 1976/77 wird das geschlossene Konzept jedoch unter Voranstellung des Proliferationsaspektes diskutiert und zum Teil sogar in Frage gestellt.

Die internationale Diskussion wurde vorwiegend im Rahmen der INFCE[1]) geführt. Die Abschlußberichte liegen seit Frühjahr 1980 vor, jedoch würde deren Behandlung über den Rahmen dieses Bändchens hinausgehen. Daher werden hier nur einige energie- und versorgungspolitische Aspekte für die Bundesrepublik Deutschland angesprochen.

Anschließend wird auf die Bedeutung des LWR-Zyklus für die Brennstoffversorgung des schnellen Brutreaktors (SBR) und dessen Interdependenz mit dem Hochtemperaturreaktor (HTR) eingegangen.

## 8.1 Massenströme im Brennstoffkreislauf eines großen Kernkraftwerks

Ein 1250-MW-Kernkraftwerk mit Druckwasserreaktor erzeugt bei 80%iger Auslastung 1000 MWe · a (8,76 · $10^9$ kWh). Der im Gleichgewicht befindliche Reaktor braucht dafür rd. 28 t Brennstoff. Der nach Erreichen seines Zielabbrandes entladene Brennstoff enthält noch etwa 25 t Uran mit einer Restanreicherung von ca. 0,9 Gew.% U 235 und etwa 0,17 t spaltbares Plutonium (Pu-239, Pu-241).

Im geschlossenen Kreislauf werden das verbliebene Uran und das erzeugte Plutonium über die Wiederaufarbeitung zurückgewonnen.

Das wiedergewonnene Uran wird erneut auf Reaktorqualität angereichert (3,2 Gew.%). Aus den entladenen 25 t lassen sich rd. 5,6 t Reaktoruran herstellen.

Das gewonnene Plutonium wird so mit Uran vermischt, daß der resultierende gesamte Spaltstoffgehalt dem des Uranbrennstoffs äquivalent ist. Faustregel hierbei ist, daß ein Gramm spaltbares Pu einem Gramm U-235 entspricht. Unter dieser Randbedingung lassen sich etwa 5,3 t U/Pu-Mischoxidbrennstoff (Mox-Brennstoff) erzeugen, so daß insgesamt etwa 10 t Rezyklierbrennstoff bereitgestellt werden können. Der restliche Bedarf von rd. 18 t angereichertem Uran muß durch Zuführung von Natururan gedeckt werden.



1) INFCE = International Fuel Cycle Evaluation

Durch den Einsatz von Rezyklierbrennstoff lassen sich insgesamt rd. 65 t Natururan einsparen, das sind, bezogen auf den Natururanbedarf, ohne Rezyklierung etwa 39%. Ähnliche Zahlen gelten auch für den Siedewasserreaktor (SWR).

Tab. 16: Theoretisches Einsparungspotential an Natururan bei Rezyklierung wiedergew. Brennstoffe (nach [1])

| | | SWR | | DWR | |
|---|---|---|---|---|---|
| Abbrand | MWd/t | 27500 | Einsp.% | 32500 | Einsp.% |
| Rückführb. U | t/GW·a | 28,4 | | 24,6 | |
| Restanreicherung | Gew. % | 0,84 | | 0,9 | |
| Rückführbares $Pu_{fiss}$ | t/GW·a | 0,165 | | 0,169 | |
| U nat-Bedarf f. Nachladung | | | | | |
| a) o/Rückf. | tU/GW·a | 166,3 | — | 165,2 | — |
| b) m/Rückf.U | tU/GW·a | 130,3 | 21,6 | 130,8 | 20,8 |
| c) m/Rückf.U + Pu | tU/GW·a | 100,8 | 39,4 | 100,5 | 39,1 |

Die tatsächlich erzielbaren Einsparungen können geringer sein, da sich im wiedergewonnenen Brennstoff neutronen-absorbierende Isotope (U-236, Pu-240, Pu-242) aufbauen, die durch entsprechend höhere Spaltstoffanteile kompensiert werden müssen.

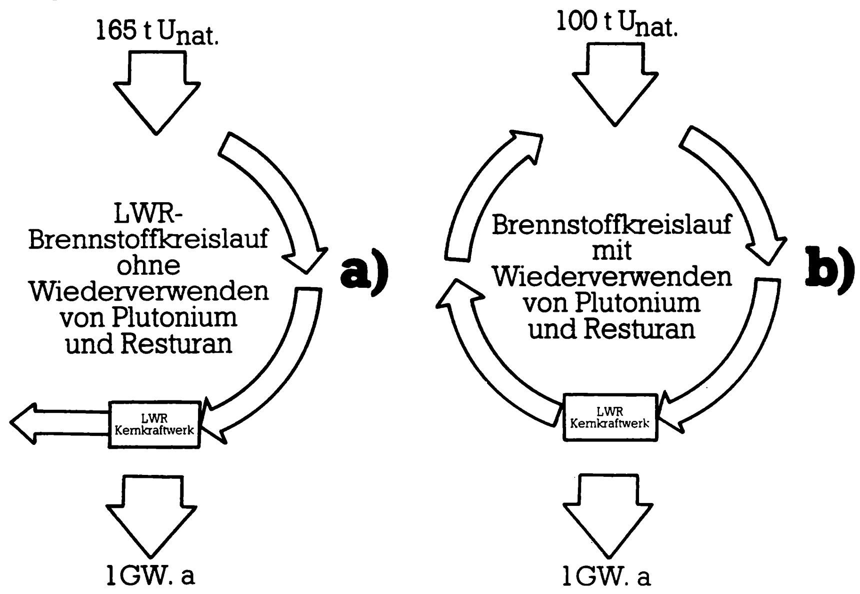



Abb. 30: Natururanbedarf eines LWR mit a) offenem Kreislauf, b) geschlossenem Kreislauf

Da im offenen oder Wegwerfzyklus der gesamte entladene Brennstoff letztlich ins Endlager verbracht wird, muß in diesem Fall der gesamte Nachladungsbedarf durch Zuführung von Natururan abgedeckt werden.

Der Natururanbedarf für 1 GW·a nuklearelektrische Erzeugung dürfte daher in der Praxis um rund 30% höher anzusetzen sein als im geschlossenen Brennstoffzyklus. Selbst beim derzeit niedrigen Weltmarktpreis [4] von 25 $ / lb $U_3O_8$ verursachen 50 t Mehrbedarf an Natururan ein zusätzliches Einfuhrvolumen von reichlich 3,2 Mio Dollar.

## 8.2 Energiewirtschaftliche Bedeutung des geschlossenen Zyklus

Die Bundesrepublik ist hinsichtlich ihrer Natururanversorgung praktisch ausschließlich auf Importe angewiesen. Die Wiederaufarbeitung, verbunden mit der Rückführung von Uran und Plutonium, kann diese Abhängigkeit dämpfen. Der Energieinhalt der jährlich in der ursprünglich geplanten Wiederaufarbeitungsanlage Gorleben rückgewinnbaren Wertstoffe wurde auf etwa 40 Mio t Steinkohleeinheiten geschätzt. Dies entspricht etwa der halben Jahresförderung an Steinkohlen in der Bundesrepublik. [2]

### 8.2.1 Urannutzung der wichtigsten Reaktortypen

Bedingt durch den geringen Spaltstoffgehalt des Natururans (0,72% U-235) werden in den Leichtwasserreaktoren nur geringe Nutzungsgrade, bezogen auf die insgesamt einzusetzende Uranmenge, erreicht. Sie liegen bei etwa 1%. Bessere können nur durch die Konversion des nicht spaltbaren U 238 zu Pu 239 erzielt werden. Bezieht man die Zahl der neu gebildeten Spaltstoffkerne (U 233, Pu 239, Pu 241) auf die Zahl der gleichzeitig verbrauchten Spaltstoffkerne, so erhält man den Konversionsfaktor (CR). Für den LWR liegt er bei

$CR_{LWR} \approx 0{,}5$—$0{,}8$

Im HTR sind derzeit Werte von ≈ 0,8—knapp 1 erreichbar.

Wird der Wert 1 überschritten, wie dies beim Brutreaktor bereits erreicht wurde, so werden mehr Spaltstoffkerne erzeugt, als zum Betrieb des Reaktors verbraucht werden. Hier spricht man nicht mehr von Konversions-, sondern von Brutrate (BR)[2].

Durch Rückführung des netto erzeugten Spaltstoffgewinns lassen sich die vorhandenen Uranreserven um den Faktor 60 besser nutzen als in den heutigen niedrig konvertierenden Leichtwasserreaktoren.

Die Tragweite dieser Tatsache läßt sich am Beispiel der Bundesrepublik aufzeigen, die nach heutiger Kenntnis über etwa 5000 t bauwürdige Uranreserven verfügt.

2) Im Phenix, einem SBR in Frankreich, wurde eine Brutrate von 1,16 erreicht.

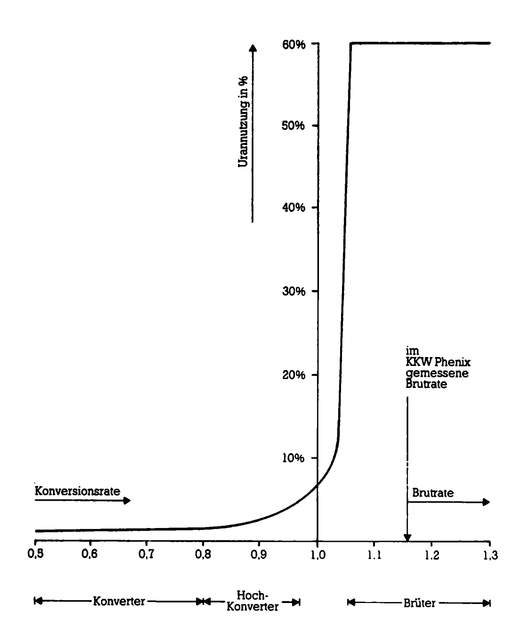



Abb. 31: Urannutzung als Funktion der Konversions- bzw. Brutrate

Der Energiegehalt dieser geringen Reserve entspricht bei ausschließlicher Nutzung im LWR etwa 0,12 Mrd. t Steinkohleneinheiten (SKE). Bei Nutzung im SBR entspricht die gleiche Uranmenge jedoch 7,2 Mrd. t SKE. (Die ökonomisch gewinnbaren Reserven an fossilen Energieträgern der Bundesrepublik werden auf 9—15 Mrd. t SKE geschätzt.) [3]

## 8.2.2 LWR — Zyklus und Brütererstversorgung

Ein Brutreaktor braucht für seine Brennstofferstausstattung spaltbares Plutonium, für den laufenden Betrieb muß seinem Brennstoffkreislauf nur noch Brutstoff (U 238) zugeführt werden. Sowohl das für die Erstausstattung erforderliche Plutonium als auch das notwendige Uran können aus dem Kreislauf der Leichtwasserreaktoren abgezogen werden.

Der Pu-Erstbedarf eines 1000-MWe-Brüterkraftwerkes beträgt ca. 7,2 t. Diese Menge kann durch die Aufarbeitung von etwas mehr als 700 t abgebranntem LWR-Brennstoff gewonnen werden.

Das für die Erstausstattung und den laufenden Betrieb erforderliche Uran kann ebenfalls dem LWR-Kreislauf entnommen werden. Es kann sowohl wiederaufgearbeitetes Uran als auch abgereichertes „Abfalluran" aus der Anreicherung sein. Letzteres steht heute bereits weltweit in der Größenordnung von mehreren 10000 Tonnen zur Verfügung.

Der als Beispiel dienende 1000-MWe-Brüter braucht für seine Erstausstattung knapp 90 t abgereichertes Uran, für den laufenden Bedarf etwa 32 t Uran brutto. Bei voller Rückführung des Eigenurans sinkt der Jahresnettobedarf auf lediglich 1,7 t Uran pro Jahr.




Abb. 32: Uranbedarf eines SBR

## 8.2.3 Gekreuzte Zyklen SBR — HTR

Wird im Brutreaktor statt des Uran 238 als Brutstoff Thorium 232 eingesetzt, so wird der Spaltstoff Uran 233 erbrütet.

Th 232 + n → Th 233 → Pu 233 → U 233

Das erbrütete U 233 kann im Hochtemperaturreaktor das sonst notwendige U 235 ersetzen, das dort in hoher Anreicherung (93 Gew. %) eingesetzt wird. Mit der Erzeugung und Verwendung von U 233 über das Thorium verbinden sich zwei Vorteile. Erstens kann auf diese Weise das etwa viermal häufiger als Uran vorkommende Thorium genutzt werden, zweitens kann der Natururanbedarf des HTR gesenkt werden.

Literatur zu Kapitel 8

[1] Jaek, W., Pickert, F.-K., Zech, H.-J.: Wiederaufarbeitung und Rückführung nuklearer Brennstoffe.
Teil I. 5 Studie E 1—2 Nukleare Primärenergieträger, ASA—ZE/08/78 Köln 1978
[2] Schüller, W.: Kann man die Kernenergie angesichts des Entsorgungsproblems heute verantworten?
In: Nr. 13 der atw-Broschüren „Kernenergie und Umwelt" Düsseldorf, Frankfurt 1978
[3] Zech, H.-J.: Der Uran-Plutoniumkreislauf in schnellen Reaktoren
Teil I. 3 Studie E 1—2 Nukleare Primärenergieträger, ASA-ZE/08/78 Köln 1978
[4] NUKEM-Marktbericht über den Kernbrennstoffkreislauf
Nukem GmbH, Hanau, 4/81

Deutsches Atomforum

# Brennstoff-kreislauf

